


Abteilung Strahlenschutz  
KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH  
des Landes Nordrhein-Westfalen



# GRUNDLAGEN UND METHODEN DER UMGEBUNGSÜBERWACHUNG

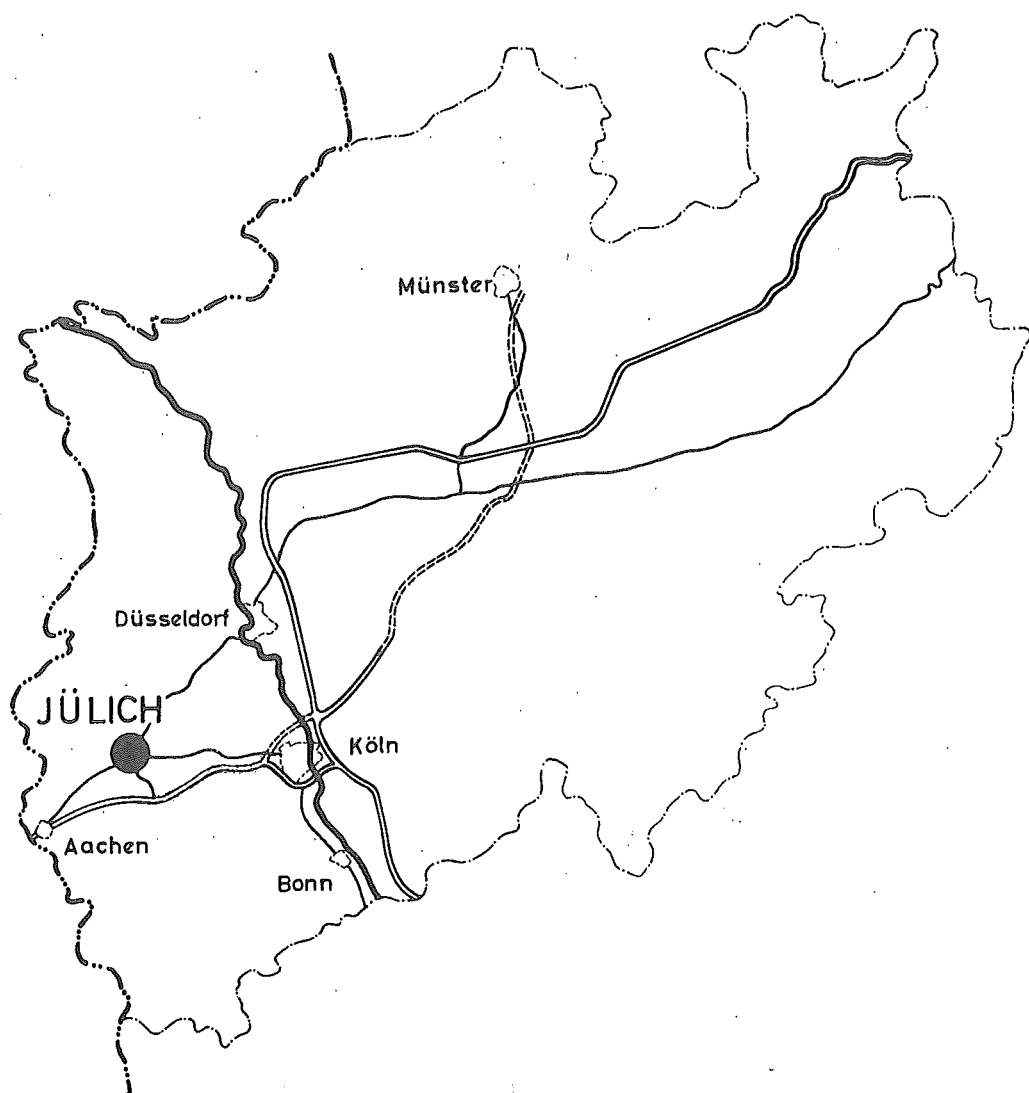
Umweltradioaktivität der Kernforschungsanlage Jülich

Jahresbericht 1960

Jü1 - 21 - ST

April 1961

Als Manuskript gedruckt



Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 21

Abteilung Strahlenschutz Jülich – 21 – ST

Dok.: RADIATION PROTECTION – ENVIRONS MONITORING \* DK 614.898.5(43) KFA

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich,  
Jülich, Bundesrepublik Deutschland

# Grundlagen und Methoden der Umgebungsüberwachung

Umweltradioaktivität der Kernforschungsanlage Jülich

Jahresbericht 1960

von

K. J. Vogt, H. W. Jensen

A. Maas, R. Tzschaschel





## Inhaltsverzeichnis

1.	D a s M e ß p r o g r a m m d e r U m g e b u n g s - ü b e r w a c h u n g	
1.1	<u>Aufgaben und historischer Überblick</u>	1
1.2	<u>Meßobjekte der Umgebungsüberwachung</u>	2
1.21	<u>Allgemeines zu den Meßobjekten</u>	2
1.22	<u>Meßobjekte zur Luftüberwachung</u>	
1.221	Strahlung im Luftraum	4
1.222	Aerosole	4
1.223	Gesamtniederschlag	5
1.23	<u>Meßobjekte zur Wasserüberwachung</u>	
1.231	Grundwasser	5
1.232	Trink- und Betriebswasser	5
1.233	Oberflächenwasser	6
1.234	Schlamm	6
1.235	Biologische Objekte im Oberflächenwasser	6
1.24	<u>Meßobjekte zur Überwachung von Boden, Bewuchs und land- wirtschaftlichen Produkten</u>	
1.241	Boden	6
1.242	Gras	7
1.243	Feldfrüchte	7
1.244	Milch	8
1.3	<u>Meßstellen und Meßhäufigkeiten</u>	
1.31	<u>Allgemeines zum Umfang des Meßprogrammas</u>	8
1.32	<u>Meßprogramm zur Luftüberwachung</u>	
1.321	Zentrale Luftüberwachungsstelle	9
1.322	Innerer Überwachungsring	10

## II

1.323	Äußerer Überwachungsring	10
1.324	Fahrbare Luftmeßstation (Meßwagen)	11
1.325	Meteorologische Beobachtungsstation	11
1.33	<u>Meßprogramm zur Wasserüberwachung</u>	
1.331	Grundwasser	11
1.332	Trink- und Betriebswasser	12
1.333	Oberflächenwasser	12
1.334	Schlamm	12
1.335	Biologische Objekte im Oberflächenwasser	16
1.34	<u>Meßprogramm zur Überwachung von Boden, Bewuchs und landwirtschaftlichen Produkten</u>	
1.341	Boden	16
1.342	Gras	16
1.343	Feldfrüchte	17
1.344	Milch	17
2.	M e t h o d e n u n d E r g e b n i s s e d e r U m g e b u n g s ü b e r w a c h u n g	
2.1	<u>Luftüberwachung</u>	
2.11	<u>Strahlung im Luftraum</u>	
2.111	Grundlagen	17
2.112	Methodik	19
2.113	Meßergebnisse	21
2.114	Diskussion	21
2.12	<u>Aktivität der Aerosole</u>	
2.121	Grundlagen	25
2.122	Methodik	28
2.123	Meßergebnisse	38
2.124	Diskussion	46

2.13	<u>Aktivität des Gesamtniederschlags</u>	
2.131	Grundlagen	55
2.132	Methodik	57
2.133	Meßergebnisse	63
2.134	Diskussion	63
2.14	<u>Meteorologische Überwachung</u>	
2.141	Grundlagen	72
2.142	Methodik	74
2.143	Meßergebnisse	75
2.144	Diskussion	90
2.2	<u>Wasserüberwachung</u>	
2.21	<u>Aktivität des Grundwassers</u>	
2.211	Grundlagen	97
2.212	Methodik	97
2.213	Meßergebnisse	102
2.214	Diskussion	102
2.22	<u>Aktivität des Trink- und Betriebswassers</u>	
2.221	Grundlagen	103
2.222	Methodik	103
2.223	Meßergebnisse	103
2.224	Diskussion	106
2.23	<u>Aktivität des Oberflächenwassers</u>	
2.231	Grundlagen	106
2.232	Methodik	107
2.233	Meßergebnisse	107
2.234	Diskussion	107
2.24	<u>Aktivität von Schlamm und biologischen Objekten im Oberflächenwasser</u>	
2.241	Grundlagen	118
2.242	Methodik	121
2.243	Meßergebnisse	122
2.244	Diskussion	124

2.3	<u>Überwachung von Boden, Bewuchs und landwirtschaftlichen Produkten</u>	
2.31	<u>Aktivität des Acker-, Weide- und Waldbodens</u>	
2.311	Grundlagen	125
2.312	Methodik	126
2.313	Meßergebnisse	133
2.314	Diskussion	133
2.32	<u>Aktivität von Gras</u>	
2.321	Grundlagen	138
2.322	Methodik	138
2.323	Meßergebnisse	139
2.324	Diskussion	140
2.33	<u>Aktivität von Feldfrüchten und Milch</u>	
2.331	Grundlagen	142
2.332	Methodik	142
2.333	Meßergebnisse	143
2.334	Diskussion	144
	Verzeichnis der Tabellen	147
	Verzeichnis der Abbildungen	149
	Literaturnachweis	151
	Karten	157

## 1. Das Meßprogramm der Umgebungsüberwachung

### 1. 1 Aufgaben und historischer Überblick

Aufgabe der Umgebungsüberwachung im Rahmen eines Kernforschungszentrums ist die Kontrolle der radioaktiven Emissionen der Reaktoren und Institute. Insbesondere ist die Einhaltung der in der Strahlenschutzverordnung festgelegten höchstzulässigen Bestrahlungsdosen und der maximal zulässigen Konzentrationen in Luft und Wasser in der Umgebung der kerntechnischen Anlage zu gewährleisten. Darüberhinaus ist durch Überwachung der Nahrungsmittel sicherzustellen, daß keine gefährliche Kontamination von Milch, Feldfrüchten, Fischen usw. vorliegt und die auf dem Wege des Stoffwechsels von der Bevölkerung inkorporierten Aktivitäten in jedem Falle unterhalb der international als unschädlich anerkannten Werte bleiben.

Um vor der Fertigstellung der Reaktoren und Institute den sogenannten radioaktiven Nullpegel zu ermitteln, der die natürliche Radioaktivität und die aus Atombombenversuchen stammende künstliche Aktivität des radioaktiven Fallout umfaßt, sind von der Abteilung Strahlenschutz der Kernforschungsanlage Jülich (vormals Gesellschaft zur Förderung der kernphysikalischen Forschung) seit 1958 Radioaktivitätsmessungen im Jülicher Raum durchgeführt worden.

Diese Messungen sollten einerseits eine radioaktive Bestandsaufnahme in der Umgebung der Kernforschungsanlage liefern, bevor radioaktive Emissionen den ursprünglichen Kontaminationspegel verändern können und andererseits der Beweissicherung dienen.

Dabei war es notwendig, die Messungen über einen längeren Zeitraum fortzusetzen, um einen zuverlässigen Überblick über die absolute Größe, Herkunft und Qualität der Strahlung zu gewinnen und Gesetzmäßigkeiten in den charakteristischen jahreszeitlich, meteorologisch oder durch Fallout bedingten Schwankungen bzw. langfristigen Veränderungen des radioaktiven Nullpegels zu erfassen.

Unsere Nullpegelmessungen begannen im März 1958. Das Meßprogramm war seinerzeit in Übereinstimmung mit den Vorstellungen der Aufsichtsbehörden ent-

wickelt worden und enthielt neben Aktivitätsbestimmungen von Wasser- und Niederschlagsproben zunächst nur Relativmessungen der Strahlung in Luft und Boden. Seither wurde das Meßprogramm mehrfach verfeinert und methodisch erweitert und die Zahl der Meßstellen erhöht. Nach zweijährigen Erfahrungen wurde die Nullpegelmessung als beendet angesehen und ab Mai 1960 die Umstellung auf ein Meßprogramm begonnen, das auf der Sitzung des interministeriellen Ausschusses am 8.4.1960 von den Aufsichtsbehörden als zur Umgebungsüberwachung im Betriebsfall der Kernforschungsanlage geeignet gebilligt wurde.

Aus Gründen der Vergleichbarkeit war bereits die Nullpegelmessung den späteren Erfordernissen der Überwachung im Betriebsfall methodisch weitgehend angepaßt worden. Auch die Meßstellen waren im allgemeinen so gewählt, daß sie in das endgültige Meßprogramm übernommen werden konnten.

Die Meßergebnisse werden zur Dokumentation in monatlichen Berichten veröffentlicht. Darin werden Resultate der diskontinuierlichen Messungen in Tabellenform angegeben, die kontinuierlich gemessenen Größen einschließlich der meteorologischen Beobachtungen werden synoptisch in ihrem zeitlichen Verlauf graphisch dargestellt. Die Beschreibung der Meßverfahren, die Darstellung methodischer Untersuchungen, eingehende Fehlerabschätzungen und die Diskussion der Meßergebnisse erfolgt in den Jahresberichten (vgl.(1)).

## 1. 2 Meßobjekte der Umgebungsüberwachung

### 1.21 Allgemeines zu den Meßobjekten

Vor der Aufstellung eines Meßprogramms muß die Frage geklärt werden, welche Meßobjekte sich zur Überwachung der in flüssiger oder gasförmiger Phase bzw. in staubförmiger Dispersion vorliegenden radioaktiven Emissionen der kerntechnischen Anlagen eignen und welche physikalischen Meßgrößen für jedes einzelne Meßobjekt zu bestimmen sind.

An eine optimale Überwachung sind folgende Anforderungen zu stellen:

Die Meßmethoden sind so auszuwählen, daß sowohl der normale Betriebsfall als auch der unwahrscheinlichste Katastrophenfall erfaßt werden. Kurz-

lebige und langlebige, natürliche und künstliche Aktivitäten sollen getrennt nachgewiesen werden. Die Messungen sollen einerseits kontinuierlich und unverzögert erfolgen und andererseits möglichst empfindlich sein. Sie sollen über Herkunft und Qualität der Strahlung Aufschluß geben,  $\alpha$ -,  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahler sollen nachgewiesen, die spektrale Verteilung der Energie ermittelt und die Nuklide identifiziert werden.

Da diese sich zum Teil gegenseitig ausschließenden Forderungen auch aus Gründen der Aufwendigkeit nicht alle gleichzeitig erfüllt werden können, gilt es, einen physikalisch vernünftigen, wirtschaftlich tragbaren Kompromiß zu finden, der den Sicherheitsansprüchen genügt. Daher empfiehlt es sich, für die Messungen eine Anzahl charakteristischer und sich ergänzender Meßobjekte und Meßgrößen auszuwählen und ein abgestuftes Meßverfahrensschema anzuwenden, bei dem aufwendige Analysen erst eingesetzt werden, wenn im Routineprogramm eine ungewöhnliche Aktivitätserhöhung festgestellt wird.

Diesen Grundsätzen entsprechend haben sich unempfindliche Direktmessungen (z.B. Relativmessungen der Strahlung im Luftraum) und nach anreichernden Verfahren arbeitende verzögerte Messungen mit größerer Empfindlichkeit (z.B. Absolutmessung der Aerosol-Aktivität) zu ergänzen. Grundsätzlich ist also die Betreibung von Meßgeräten als Monitor zur Sofortwarnung ohne absolute Meßwertangabe von der genauen Gesamtaktivitätsmessung zu unterscheiden. Diese stellt ihrerseits eine nicht spezifizierende Vorstufe zu der  $\gamma$ -spektrometrischen und chemisch-analytischen Identifizierung der Nuklide dar, die im allgemeinen, um unnötigen Aufwand zu vermeiden, nicht routinemäßig durchgeführt wird, sondern erst einsetzt, wenn die Gesamtaktivitätsbestimmung eine Erhöhung des normalen Aktivitätspegels anzeigt.

Zusammenfassend können folgende Meßobjekte für die Überwachung der radioaktiven Emissionen kerntechnischer Anlagen als geeignet angesehen werden:

Die gas- und staubförmigen Emissionen lassen sich über die Strahlung im Luftraum (Umgebungsstrahlung) sowie über die Radioaktivität der Aerosole (schwebender Staub), mit Einschränkungen auch über die Aktivität der Gesamtniederschläge (sedimentierender Staub und Regen) nachweisen. Indirekt können die langlebigen Nuklide, die gegebenenfalls in der Abluft enthalten sind, nach ihrer Akkumulierung auf dem Erdboden, im Boden, Bewuchs und in



den landwirtschaftlichen Produkten erfaßt werden.

Die Wirksamkeit der Maßnahmen, die zum Schutz des Wassers vor radioaktiven Kontaminationen getroffen sind, läßt sich durch Aktivitätsmessungen im Grund-, Trink- und Oberflächenwasser überprüfen. Über eine evtl. Anreicherung radioaktiver Nuklide geben Messungen des Flußschlammes und der biologischen Objekte im Oberflächenwasser (Pflanzen, Wassertiere) Aufschluß.

Im einzelnen ist die Bedeutung der Meßobjekte der Umgebungsüberwachung wie folgt zu beurteilen:

## 1.22 Meßobjekte zur Luftüberwachung

### 1.221 Strahlung im Luftraum

Die Messung der Strahlung im Luftraum dient vor allem der Überwachung des gasförmigen A-41. Wegen der Höhe des natürlichen Nullpegels (größtenteils Boden- und Höhenstrahlung) lassen sich die gefährlicheren Nuklide auf diesem Wege nicht nachweisen, da ihre maximal zulässige Konzentration in Luft den Nullpegel nicht signifikant erhöht. Bei Auftreten erhöhter Aktivität durch A-41 oder auch bei größeren Emissionen anderer Nuklide ermöglicht die Direktmessung der Dosisleistung mit Ionisationskammern bzw. der  $\gamma$ -oder ( $\beta+\gamma$ )-Strahlung mit Zählrohren, Sofortmaßnahmen zur Beseitigung der Gefahren zu ergreifen.

Im normalen Betriebsfall und beim Auftreten besonderer Vorkommnisse liefert eine integrierende Zählung Material für die Beurteilung der äußeren Strahlenbelastung für die Bevölkerung in der Umgebung des Forschungszentrums.

### 1.222 Aerosole

Die gefährlicheren Nuklide in der Luft können nur nach Anreicherung durch Ausfiltern größerer Luftvolumina mit genügender Empfindlichkeit nachgewiesen werden. Die Verwendung geeigneter Verfahren erlaubt eine Aktivitätsmessung von  $\alpha$ - und  $\beta$ -Strahlern unterhalb der maximal zulässigen Konzentration. Da die Spaltgase feste Folgeprodukte haben, die mit den Aerosolen abgeschieden werden können, werden außer A-41 alle Nuklide direkt oder indirekt bei der Aerosolmessung erfaßt.

Bei Durchführung von Abklinganalysen liefert die Aerosolüberwachung Anhaltspunkte für die Gefahr bei Inkorporation durch den Menschen (innere Bestrahlung).

### 1.223 Gesamtniederschlag

Mit der Messung der  $\beta$ -Aktivität des Gesamtniederschlages soll der Beitrag großräumiger Immissionen (z.B. Fallout aus kerntechnischen Versuchen) beurteilt werden. Für die Überwachung im normalen Betriebsfall hat die Gesamtniederschlagsmessung (Hibernia-Trichter, Haftfolien) geringere Bedeutung. Die dem Boden durch Niederschlag zugeführte Aktivität stammt, soweit Emanationsfolgeprodukte und künstlicher Fallout betroffen sind, aus Luft-räumen bis zu vielen Kilometern Höhe, während die Emissionen der Atomforschungsanlage nur die bodennahe Luftschicht kontaminieren können. Diese dünne Schicht leistet aber zur Gesamtniederschlagsaktivität nur dann einen meßbaren Beitrag, wenn bei Zwischenfällen ungewöhnlich große Emissionen auftreten. Die dabei gegebenenfalls entstehenden hohen Aktivitätskonzentrationen in der bodennahen Luft können aber viel empfindlicher nach der Aerosolmethode gemessen werden. Eine begrenzte Anwendbarkeit der Gesamtniederschlagsmessung außerhalb der oben erwähnten Nullpegelkontrolle ist also nur im Katastrophenfall gegeben, für den aber auch andere Methoden zur Verfügung stehen.

### 1.23 Meßobjekte zur Wasserüberwachung

#### 1.231 Grundwasser

Der vorsorgliche Charakter der Umgebungsüberwachung tritt bei den Grundwassermessungen besonders hervor, da eine Kontamination des Grundwassers bei dichter Ausführung des Abwasserkanalsystems einschließlich Dekontaminierungsanlage und Entwässerungsgraben unvorstellbar ist. Eine Grundwasserverseuchung auf dem Wege über gas- und staubförmige Emissionen ist ausgeschlossen.

#### 1.232 Trink- und Betriebswasser

Hier gilt das bereits für das Grundwasser Gesagte. Wegen der besonderen Bedeutung der Trinkwasseruntersuchung für den Schutz der Bevölkerung

halten wir aber den Aufwand einer getrennten  $\alpha$ - und  $\beta$ -Bestimmung bei den Wasserwerken in der näheren Umgebung des Forschungszentrums für gerechtfertigt.

#### 1.233 Oberflächenwasser

Der Schwerpunkt der Wasserüberwachung liegt auf der Kontrolle der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Aktivität im Oberflächenwasser, da die Abwässer der Kernforschungsanlage in die Rur abgeleitet werden. Eine kontinuierliche Sofortmessung des Oberflächenwassers ist nicht nötig, da besonders kurzlebige Aktivitäten die Rückhaltebecken nicht passieren und ganz allgemein alle Abwässer erst nach Kontrolle ihrer Aktivität in den Entwässerungsgraben abgegeben werden. Dagegen ist eine kontinuierliche Probenahme erforderlich, damit auch kurzzeitige Aktivitätsspitzen erfaßt werden.

#### 1.234 Schlamm

Zur Untersuchung der eventuellen Anreicherung von Nukliden wird die Bestimmung der  $\beta$ -Aktivität im Flußschlamm durchgeführt. Auf diesem integrierenden Wege lassen sich unter Umständen Aufschlüsse über die Akkumulation zunächst unterschwelliger Aktivitätskonzentrationen gewinnen. Die praktische Bedeutung dieser Messung ist beschränkt, da Aktivitäten im Schlamm für den Menschen keine Gefahr darstellen, solange die Aktivität von Wasser und Fischen vernachlässigbar bleibt.

#### 1.235 Biologische Objekte im Oberflächenwasser

Da eine selektive Anreicherung von Nukliden in biologischen Objekten des Oberflächenwassers möglich ist, werden bei Wasserpflanzen und Fischen außer der Gesamt- $\alpha$ - und  $\beta$ -Aktivität auch Einzelnuklide wie Sr-90 gemessen.

#### 1.24 Meßobjekte zur Überwachung von Boden, Bewuchs, landwirtschaftlichen Produkten

##### 1.241 Boden

Im Gegensatz zur Aerosolmessung hat die Bodenüberwachung in erster Linie

die Aufgabe, Immissionen langlebiger Nuklide zu messen, die über den Luftraum in den Boden gelangen. Obwohl die maximal zulässige Konzentration in Luft normalerweise um Größenordnungen unterschritten wird, könnten sich die auf dem Boden abgelagerten Aktivitäten im Laufe der Zeit zu einem gut meßbaren Maß akkumulieren.

Bei den komplexen Aktivitätsverhältnissen des Bodens sind Gesamtaktivitätsmessungen problematisch. Aus meßtechnischen Gründen (Anreicherung der spezifischen Aktivität zur Verringerung der Selbstabsorption) und wegen der Notwendigkeit der Identifizierung sind chemische Analysen nach bestimmten Nuklidgruppen oder Einzelnukliden, z.B. Sr-90, vorzunehmen. Bei den Bodenproben sind diese Spezifizierungen schon in das Routineprogramm aufzunehmen, weil sich im Gegensatz zu den Luft- und Wasseraktivitätsmessungen Nuklide unterschiedlichster Herkunft aus der gesamten Vergangenheit überlagern. Zur Identifizierung von  $\gamma$ -Strahlern können auch  $\gamma$ -spektrometrische Verfahren eingesetzt werden.

Neben dieser empfindlichen Überwachung der langlebigen Aktivitäten sind die Bodenmessungen für die Beurteilung von nicht beabsichtigten größeren Emissionen (Betriebszwischenfälle, Katastrophenfälle) bedeutsam.

#### 1.242 Gras

Die Kontamination des Bewuchses durch radioaktiven Fallout erfolgt z.T. über Vegetationsfilterung, wobei der Staub unmittelbar auf den Pflanzen abgeschieden wird. Bei einer Untersuchung der Aktivität von Gras wird besonders die der Erdoberfläche im Laufe der den Probennahmen vorausgegangenen Wochen zugeführte Aktivität gemessen.

Bei größeren Emissionen kann die radioaktive Verseuchung des Bodens durch Messung der Gesamtaktivität von Gras besonders schnell abgeschätzt werden.

#### 1.243 Feldfrüchte

Wegen ihrer Bedeutung für die menschliche Ernährung ist die Aktivität von Feldfrüchten, spezifiziert nach Nuklidgruppen und Nukliden (Erdalkaligruppe, Sr-90, Cs-137 und J-131), zu messen. Besonderes Interesse gilt dem Gehalt an Sr-90 als biologisch gefährlichstem Spaltprodukt.

### 1.244 Milch

Bei Aktivitätsfreisetzung infolge Reaktorunfällen stellt im allgemeinen das flüchtige Jod die Hauptgefahrenquelle dar. Da nach ausländischen Erfahrungen in diesem Falle J-131 über die Kontamination des Weidegrases mit einer Verzögerung von nur wenigen Tagen angereichert in der Kuhmilch auftritt, die ein Hauptnahrungsmittel des Menschen darstellt, kann der Jodgehalt der Milch als Kriterium für die Gefährdung der Bevölkerung angesehen werden. Auch für die Verseuchung des Bodens mit Cs-137, und damit für die Kontamination mit langlebigen Spaltprodukten überhaupt, ist die Milchaktivität ein Indikator. Es sollte daher die Milchaktivität unter anderem spezifiziert nach Sr-90, J-131 und Cs-137 gemessen werden.

## 1.3 Meßstellen und Meßhäufigkeiten

### 1.31 Allgemeines zum Umfang des Meßprogramms

Die Konzeption eines für die Überwachung der Kernforschungsanlage geeigneten Meßprogramms ergibt sich durch Anwendung der im Zusammenhang mit der Beurteilung der für die Überwachung von Luft, Wasser und Boden geeigneten Meßobjekte entwickelten allgemeinen Prinzipien auf den Spezialfall des Jülicher Forschungszentrums unter Berücksichtigung der örtlichen hydrologischen und meteorologischen Verhältnisse usw.

Den Idealfall der Umgebungsüberwachung stellt ein räumlich, zeitlich und funktionell ausreichend dichtes Überwachungssystem dar:

1. Funktionelle oder methodische Lückenlosigkeit ist gegeben, wenn die verwendeten Meßverfahren Aktivitäten jeder Herkunft, Strahlerqualität, Halbwertszeit und Größenordnung, soweit strahlenschutzmäßig belangvoll, zu erfassen gestatten. Diese Forderung läßt sich an jeder Meßstelle durch eine geeignete Kombination der oben abgehandelten Meßobjekte erfüllen.

2. Die räumliche Dichte des Überwachungssystems ist ebenfalls in physikalischem Sinne zu verstehen. Die Luftmeßstationen zur Kontrolle des A-41 können z.B. entsprechend der Reichweite der  $\gamma$ -Strahlung Abstände von mehreren hundert Metern haben, für die Abwasserüberwachung in der Rur genügt

bei Einhaltung gewisser Voraussetzungen je ein Probennahmeort oberhalb und unterhalb der Einleitungsstelle.

3. Die zeitliche Kohärenz der Messungen kann durch Anwendung kontinuierlicher Probennahme- oder Meßverfahren gewährleistet werden. Auch integrierende Methoden wie z.B. bei den Bodenproben sind ihrem Wesen nach als kontinuierliche Überwachung aufzufassen. Während kontinuierliche Messungen nur sinnvoll sind, wenn die Kenntnis des zeitlichen Verlaufs für eine Meßgröße zu fordern ist, können kontinuierliche Probenahmen bzw. integrierende Methoden angewendet werden, wenn eine Messung des zeitlichen Mittelwertes ausreicht. In einigen Fällen läßt der gegenwärtige Stand der Meßtechnik überhaupt nur stichprobenweise Messungen zu bzw. sind bei kritischer Beurteilung der Meßaufgabe (mögliche Gefährdung, technischer Aufwand und Aussagewert der Messungen) nur Stichproben zu rechtfertigen.

#### 1.32 Meßprogramm zur Luftüberwachung (Karte 1 (Anhang), Tab.1)

##### 1.321 Zentrale Luftüberwachungsstelle

Zur Kontrolle der gas- und staubförmigen Emissionen der Kernforschungsanlage wird im Gebäude der Abteilung Strahlenschutz eine zentrale Luftüberwachungsstelle eingerichtet, bei der parallel alle Standardverfahren eingesetzt werden sollen, die im einzelnen bei den übrigen Luftmeßstationen Verwendung finden. Dadurch ist nicht nur eine besonders zuverlässige Überwachung des Forschungszentrums gewährleistet, sondern auch die Möglichkeit gegeben, die verschiedenen Meßverfahren zu vergleichen und Rückschlüsse auf Herkunft und Qualität der gemessenen Aktivitäten zu tun.

Zur Ermittlung der äußeren Bestrahlung dient eine Ionisationskammeranlage, die die Dosisleistung in r/h kontinuierlich registriert. Abgeschirmte und nicht abgeschirmte Zählrohre, die ebenfalls kontinuierlich betrieben werden, werden eingesetzt zur Unterscheidung zwischen  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlung. Ionisationskammer und Zählrohr sind zum Nachweis von A-41 und kurzlebiger Spaltprodukte in der Größenordnung der maximal zulässigen Konzentration geeignet.

Zum Nachweis der gefährlicheren langlebigeren Nuklide werden ein kontinu-

ierlich messendes Faserfilterbandgerät und ein elektrostatischer Staubprobensammler eingesetzt. Die letztere Methode erlaubt in Verbindung mit einem Durchflußzählrohr auch den Nachweis der  $\alpha$ -Strahlung. Außerdem erfolgt an gleicher Stelle bei kontinuierlicher Sammlung (Hibernia-Trichter) und wöchentlicher Ausmessung die Überwachung des Fallout .

### 1.322 Innerer Überwachungsring

Der Standort der Meßstellen des inneren Überwachungsringes wurde so gewählt, daß ihre Entfernungen von den Emittlern zwischen 800 und 1500 m liegen. Nach den bisherigen meteorologischen Feststellungen ist anzunehmen, daß das Maximum der A-41-Konzentration in etwa 60 % aller möglichen Wetterlagen in diesem Abstand auftreten wird. Der Überwachungsring besteht aus sechs Meßstationen, die bis zur Inbetriebnahme des Reaktors Merlin fertiggestellt sein werden. Die dort verwendeten Detektoren sollen für  $\gamma$ -Strahlung empfindlich sein, um im wesentlichen die Ausbreitung des A-41 zu kontrollieren. Die Meßwerte werden logarithmisch über mehrere Dekaden registriert, um den ganzen Bereich vom Nulleffekt bis zu den maximal auftretenden Werten ohne Bereichsumschaltung darstellen zu können. Es erfolgt eine Fernübertragung von Meßwerten und Meldungen über Geräteausfall in das Strahlenschutzgebäude und gleichzeitig in die Kommandozentrale der Kernforschungsanlage. Weiterhin sollen zur empfindlichen Aerosolmessung die Luftmeßstationen mit Filtergeräten ausgestattet werden, deren Typ noch festzulegen ist. Späterhin können die Meßstellen im Bedarfsfall noch mit weiteren Meßgeräten ausgestattet werden.

### 1.323 Äußerer Überwachungsring

Die Meßstellen des äußeren Luftüberwachungsringes, ca. 2 km von den Emittlern entfernt, dienen der unmittelbaren Überwachung der Bevölkerung und werden in den umliegenden Ortschaften Jülich, Stetternich, Hambach, Daubenrath und auf dem Gelände des Eisenbahnausbesserungswerkes Jülich-Süd eingerichtet. Sie sind mit kontinuierlich registrierenden Geräten mit jeweils zwei Zählrohren ausgerüstet, von denen eines gegen  $\beta$ -Strahlung abgeschirmt ist. Eine feste Ausstattung mit Staubprobensammlern ist nicht erforderlich, da die Aerosole bereits ständig vom inneren Überwachungsring erfaßt werden. Stattdessen wird dort eine diskontinuierliche Messung des Luftstaubes mit einem Meßwagen durchgeführt, die im kommenden Jahr durch



eine Überwachung des Fallout ersetzt werden soll.

#### 1.324 Fahrbare Luftmeßstation (Meßwagen)

Eine lückenlose Luftüberwachung müßte ein zweidimensionales System von Luftmeßstationen vorsehen, da nicht nur die Windrichtung wechselt, sondern auch die radiale Entfernung des Strahlungsmaximums von den radioaktiven Emitttern mit den meteorologischen Bedingungen schwankt. Da die Zahl der Meßstationen andererseits begrenzt bleiben muß, wird ein spezieller Strahlungsmeßwagen eingesetzt, ausgerüstet mit Zählrohren, elektrostatischem Staubprobensammler und den zugehörigen Meßgeräten, der, von der meteorologischen Beobachtungsstation funkgesteuert, die Abluftfahne des Reaktors abfahren soll.

#### 1.325 Meteorologische Beobachtungsstation

Im Rahmen der Umgebungsüberwachung ist die Kenntnis der meteorologischen Gegebenheiten im Forschungsgelände und seiner Umgebung erforderlich. Dazu werden seit Juni 1959 von unserer meteorologischen Beobachtungsstation im Forschungszentrum Klimabeobachtungen nach den Richtlinien des Deutschen Wetterdienstes durchgeführt. Weitere Untersuchungen sind dem Temperaturverlauf, sowie der Windrichtungsverteilung und der Windstärkeänderung mit der Höhe gewidmet, die die Grundlage für die Beurteilung der Ausbreitung der Abluftfahnen der Reaktoren und Institute bilden.

#### 1.33 Meßprogramm zur Wasserüberwachung (vgl. Karte 2 u. 3 (Anhang), Tab.2)

##### 1.331 Grundwasser

Grundwasseruntersuchungen werden an 10 Peilrohren (1,2,14,15,16,17,19,20, 159,160,z.T. in mehreren Horizonten) in vierteljährlichem Abstand durchgeführt, obwohl bei dichter Ausführung von Abwasserkanalssystem, Dekontaminierungsanlage und Entwässerungsgraben eine Kontaminierung des Grundwassers nicht vorstellbar ist.

Gemessen wird die  $\beta$ -Aktivität des Eindampfrückstandes. Zur Bestimmung der Rest- $\beta$ -Aktivität wird der flammenphotometrisch ermittelte K-40-Anteil von der Gesamt- $\beta$ -Aktivität abgezogen.

### 1.332 Trink- und Betriebswasser

Die Trink- und Betriebswasserüberwachung erfolgt bei den benachbarten Wasserwerken Jülich und Hambach sowie im Schwimmbad Jülich monatlich. In halbjährlichem Abstand werden bei acht Wasserwerken (Aldenhoven, Titz, Hasselsweiler, Güsten, Dirmerzheim, Törnich, Sindorf und Glesch) und zwei Betrieben (Molkerei Mersch und Zuckerfabrik Ameln) Wasserproben entnommen.

Die drei monatlich entnommenen Proben werden sowohl auf  $\alpha$ -Aktivität als auch auf  $\beta$ -Aktivität untersucht, während von den übrigen 10 Proben die  $(\alpha+\beta)$ -Aktivität angegeben wird. Die Aktivitätsbestimmung erfolgt auch hier durch Messung der Eindampfrückstände.

### 1.333 Oberflächenwasser

Es werden drei Überwachungsstationen für Oberflächenwasser eingerichtet, und zwar eine oberhalb der Einleitungsstelle des Entwässerungsgrabens (Rur bei Krauthausen), eine in geeignetem Abstand unterhalb der Einleitungsstelle (Rur bei Jülich) und eine dritte in der Nähe der holländischen Grenze bei Kempen. Für alle drei Meßstellen ist später eine kontinuierliche Probennahme mit wöchentlicher Messung vorgesehen. Zur Zeit werden wöchentlich Stichproben entnommen.

Die Untersuchung erstreckt sich auf die Bestimmung der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Aktivität des Eindampfrückstandes. Die K-40-Aktivität wird zwecks Angabe der Rest- $\beta$ -Aktivität in Abzug gebracht.

Ferner wird wöchentlich vom Wasser der Inde bei Kirchberg eine Probe eingeholt, die in derselben Weise wie das Rurwasser untersucht wird. Weitere Meßstellen sind nicht sinnvoll, da jede Aktivitätserhöhung von der kontinuierlichen Meßstelle bei Jülich erfaßt wird. Insbesondere bedürfen die Wasserläufe Elle, Ikte und Mühlenteich keiner Überwachung, da sie die abgezäunte Kernforschungsanlage nicht berühren.

### 1.334 Schlamm

An den Oberflächenwassermeßstellen Krauthausen und Jülich werden viertel-

Tab.1

Messprogramm der Umgebungsüberwachung (Stand Dezember 1960)						
<u>Überwachung der Luft</u>						
Messobjekt	Messgröße	Probennahme - bzw. Messorte	Häufigkeit	Zahl der Stellen	Zahl der Messungen im Jahr	Bemerkungen
Strahlung im Luftraum	Dosisleistung	Zentrale Luftüberwachungsstelle (Strahlenschutzgebäude)	kont. Messung	1	1 mal kont.	z.Zt. noch in Jülich-Süd (EAW) betrieben
	$\gamma$ -Impulsrate	Innerer Überwachungsring (6 Meßstellen in ca. 1 km Entfernung von den Emitttern)	kont. Messung	6	6 mal kont.	Fertigstellung Frühjahr 1961
	$\gamma$ -Impulsrate ( $\beta+\gamma$ )-Impulsrate	Zentrale Luftüberwachungsstelle (Strahlenschutzgebäude) Äusserer Überwachungsring (Jülich, Stetternich, Hambach, Daubenrath, Jülich-Süd)	kont. Messung	6	6 mal kont.	z.Zt. 3 Stationen in Betrieb (Jülich-Süd, Hambach, Forschungszentrum) Rest Frühjahr 1961
		In der Abluftfahne des Reaktors (Messwagen)	täglich	nach Bedarf	nach Bedarf	Nach Kritischwerden des Reaktors Merlin
Aerosole	$\beta$ -Aktivität	Zentrale Luftüberwachungsstelle (Strahlenschutzgebäude)	kont. Messung	1	1 mal kont.	
		Innerer Überwachungsring (6 Meßstellen in ca. 1 km Entfernung von den Emitttern)	kont. Probennahme	6	6 mal kont.	Fertigstellung 1961
	$\alpha$ -Aktivität $\beta$ -Aktivität	Zentrale Luftüberwachungsstelle (Strahlenschutzgebäude)	täglich	1	etwa 260	
		Äusserer Überwachungsring (Jülich, Stetternich, Hambach, Daubenrath, Jülich-Süd)	wöchentlich	5	260	
		In der Abluftfahne des Reaktors (Messwagen)	täglich	nach Bedarf	nach Bedarf	Nach Kritischwerden des Reaktors Merlin
Gesamt-niederschlag	dem Boden zugeführte $\beta$ -Aktivität	Forschungszentrum Jülich - Süd	kont. Probennahme wöchentl. Messung	2	104	

Tab.2

## Messprogramm der Umgebungsüberwachung (Stand Dezember 1960)

Überwachung des Wassers

Messobjekt	Messgröße	Probennahme - bzw. Messorte	Häufigkeit	Zahl der Stellen	Zahl der Messungen im Jahr	Bemerkungen
Grundwasser	Gesamt- $\beta$ -Aktivität Rest - $\beta$ -Aktivität	Grundwasser- <del>Peil</del> rohre 1, 2, 14, 15, 16, 17, 19, 20, 159, 160 (z.Teil mehrere Horizonte)	vierteljährlich	mind. 10	mind. 40	
Trink- und Betriebswasser	Gesamt- $\alpha$ -Aktivität Gesamt- $\beta$ -Aktivität Rest - $\beta$ -Aktivität	Wasserwerk Jülich und Hambach Schwimmbad Jülich	monatlich	3	36	
	Gesamt- $(\alpha+\beta)$ -Aktivität, Rest $\beta$ -Aktivität	Wasserwerke Aldenhoven (Brunnen 1 u. 4), Titz, Hasselsweiler, Güsten, Dirmerzheim, Türnich, Sindorf, Glesch, Molkerei Mersch, Zuckerfabrik Ameln	halbjährlich	11	22	
Oberflächenwasser	Gesamt- $\alpha$ -Aktivität Gesamt- $\beta$ -Aktivität Rest - $\beta$ -Aktivität	Rur bei Krauthausen (vor Oktober Selgersdorf), Jülich und Kempen	kont.Probennahme wöchentl.Messung	3	156	Fertigstellung 1960 vorher diskontinuierlich wöchentlich
		Inde bei Kirchberg	monatlich	1	12	
Schlamm	Sr-90-Aktivität	Rur bei Krauthausen und Jülich	monatlich	3	5	Vorversuche ab Oktober 60
Biol. Objekte im Oberflächenwasser (Pflanzen, Fische)	Gesamt- $\beta$ -Aktivität Rest- $\beta$ -Aktivität Sr-90-Aktivität	Rur an geeigneten Stellen oberhalb und unterhalb der Einleitung des Entwässerungsgrabens	zu geeigneten Jahreszeiten	3	16	

Tab.3

Messprogramm der Umgebungsüberwachung (Stand Dezember 1960)						
<u>Überwachung von Boden, Bewuchs und landwirtschaftlichen Produkten</u>						
Messobjekt	Messgröße	Probennahme - bzw. Messorte	Häufigkeit	Zahl der Stellen	Zahl der Messungen im Jahr	Bemerkungen
Boden	Gesamt- $\beta$ -Aktivität $\beta$ -Aktivität der Erdalkalien, Sr-90-Aktivität	Ackerboden: Gut Lorsbeck (Jülich) Weideboden: Haus Lindenberg (Stetternich) Waldboden: Staatsforst bei Stetternich	zweimonatl. Messung	3	18	
		Ackerboden: Haus Lindenberg (Stetternich) Burg Obbendorf (Hambach) Wasserwerk Hambach Güstener Hof (Güsten) Burg Höllen Weideboden: Kirchholzer Hof (Selgersdorf) Gut Winterbach (Steinstraß) Waldboden: Großer Forst bei Hambach	viermonatl. Probennahme	8		nur Probennahme, verfügbar zur späteren Messung
Gras	Rest- $\beta$ -Aktivität Sr-90-Aktivität	Haus Lindenberg (Stetternich) Gut Winterbach (Steinstraß) Kirchholzer Hof (Selgersdorf)	vierteljährlich (früher monatlich)	3	10	
Feldfrüchte	Rest- $\beta$ -Aktivität Sr-90-Aktivität	je nach Anpflanzung an den Ackerboden-Probennahmestellen	zur Erntezeit	6	17	
Milch	Rest- $\beta$ -Aktivität Sr-90-Aktivität	Haus Lindenberg (Stetternich) Gut Winterbach (Steinstraß) Kirchholzer Hof (Selgersdorf)	zweimonatlich	3	12	

jährlich Schlammproben entnommen, um eine eventuelle Anreicherung radioaktiver Nuklide im Flußschlamm zu überwachen. Zunächst erstreckt sich die Untersuchung auf die Sr-90-Aktivität.

#### 1.335 Biologische Objekte im Oberflächenwasser

An geeigneten Stellen oberhalb (Rur bei Obermaubach) und unterhalb der Einleitungsstelle des Entwässerungsgrabens (Rur bei Jülich) werden zu bestimmten Jahreszeiten biologische Objekte im Rurwasser (Wasserpflanzen und Fische) zur Untersuchung auf Radioaktivität entnommen. Nach Veraschung der Proben wird ihre  $\alpha$ - und  $\beta$ -Aktivität bestimmt. Die K-40-Aktivität wird zur Ermittlung der Rest- $\beta$ -Aktivität abgezogen. Sofern ungewöhnlich hohe Werte gemessen werden, wird eine Spezifizierung nach Sr-90 und weiteren Nukliden vorgenommen.

#### 1.34 Meßprogramm zur Überwachung von Boden, Bewuchs und landwirtschaftlichen Produkten (vgl. Karte 3 u. 4 (Anhang), Tab.3)

##### 1.341 Boden

Zur Kontrolle einer langfristigen Bodenkontamination durch den radioaktiven Fallout und zum integrierenden Nachweis der dem Boden zugeführten Aktivitäten wurden in den Monaten Januar, Februar, März, April, Juni, August, Oktober und Dezember von 3 Stellen Bodenproben entnommen. Darunter sind 1 Ackerbodenprobe (Gut Lorsbeck bei Jülich), 1 Weidebodenprobe (Haus Lindenberg bei Stetternich) und 1 Waldbodenprobe (Staatsforst bei Stetternich). Die Bodenproben werden auf  $\gamma$ -Aktivität,  $\beta$ -Aktivität der Erdalkalicarbonatgruppe und Sr-90-Aktivität untersucht.

Zur Beweissicherung werden die Proben von den genannten 3 Stellen aufbewahrt. Darüberhinaus wurden weitere 5 Ackerproben (Burg Obbendorf bei Hambach, Haus Lindenberg bei Stetternich, Burg Höllen, Güstener Hof, Wasserkwerk Hambach), 2 Weideproben (Kirchholzer Hof, Gut Winterbach) und 1 Waldprobe (Großer Forst bei Hambach) in den Monaten April, August und Dezember entnommen und für eventuelle spätere Untersuchungen aufbewahrt.

##### 1.342 Gras

Zur Überwachung der Kontamination der Vegetation wurden an drei Stellen

der Umgebung (Kirchholzer Hof, Lindenberg bei Stetternich, Gut Winterbach) Grasproben eingeholt. Die Entnahme erfolgte in den Monaten Januar, Februar, März, April, Juli und Oktober. Die Proben wurden nach Veraschung gemischt und in dieser Form auf  $\beta$ -Aktivität untersucht. Eine K-Bestimmung gestattet die Angabe der Rest- $\beta$ -Aktivität. Außerdem wurde der Sr-90-Gehalt gemessen.

### 1.343 Feldfrüchte

Von räumlich günstig gelegenen Äckern werden Feldfrüchte (Art je nach Anpflanzung) zur Erntezeit entnommen und wie die Grasproben untersucht.

### 1.344 Milch

Zur Kontrolle der Kontamination der Milch und um Aufschlüsse über den Biozyklus zu gewinnen, wurden jeden zweiten Monat von zwei Stellen (Haus Lindenberg, Gut Winterbach) Milchproben eingeholt und die Gesamt- und Rest- $\beta$ -Aktivität der Asche ermittelt.

## 2. Methoden und Ergebnisse der Umgebungsüberwachung

### 2.1 Luftüberwachung

#### 2.11 Strahlung im Luftraum

##### 2.111 Grundlagen

Die in der Atmosphäre vorhandene Strahlung geht nur zu einem geringen Teil auf in der Luft verteilte Aktivitätskonzentrationen zurück. Größere Beiträge liefern die kosmische Strahlung und die Bodenstrahlung.

Die Radioaktivität im bodennahen Luftraum ist größtenteils natürlichen Ursprungs. Es handelt sich um Folgeprodukte der im Boden vorhandenen natürlich radioaktiven Elemente, im wesentlichen aus der Uran- und Thorium-Familie, deren gasförmige Zerfallsprodukte Radon und Thoron aus dem Boden in den Luftraum diffundieren und zusammen mit ihren Folgeprodukten, die sich an die Aerosole anlagern, den Hauptanteil der Luftaktivität bilden. Detailliertere Angaben folgen unter 2.12.



Die aus Kernwaffentests stammenden Falloutaktivitäten, die auch nach Beendigung der Atombombenversuche noch über längere Zeit hinweg aus dem Reservoir der Stratosphäre nachgeliefert werden, steuern nur größenordnungsmäßig 0,1 bis 1 % zur Luftaktivität bei. Die von der Höhenstrahlung induzierte Radioaktivität der Atmosphäre, z.B. die Bildung von C-14 durch eine (n,p) Reaktion aus N-14, ist ebenfalls zu vernachlässigen.

Wesentlich größer ist der Beitrag der Bodenstrahlung, die aus den natürlich radioaktiven Bodenschätzen und der in den letzten Jahren hinzugekommenen Oberflächenbelegung durch radioaktiven Fallout stammt.

Der Anteil der kosmischen Strahlung aus dem Weltraum ist etwa von der gleichen Höhe. In Bodennähe wird die von den primären korpuskularen Strahlen ausgelöste Sekundärstrahlung gemessen, wobei deren harte Komponente im wesentlichen Mesonen, die weiche Komponente eine Kaskadenstrahlung aus Elektronen, Positronen und  $\gamma$ -Strahlung sowie die Sekundärstrahlung der harten Komponente enthält.

Für Messungen mit einem Zählrohr vom Typ BZ 120 in 10 m Höhe haben KIEFER und MAUSHARDT (2) folgende Aufschlüsselung der Impulsrate berechnet:

Gesamteffekt	381	Imp/min
davon:		
$\beta$ -Strahlung der Luftaktivität	10	Imp/min
$\gamma$ -Strahlung der Luftaktivität	12	Imp/min
$\gamma$ -Strahlung aus dem Boden	169	Imp/min
$\gamma$ -Strahlung von Fallout auf der Bodenoberfläche	22	Imp/min
Kosmische Strahlung, harte Komponente	109	Imp/min
Kosmische Strahlung, weiche Komponente	59	Imp/min
( $\alpha$ -Strahlung nicht gemessen)		

Die mit einem Zählrohr gemessene Strahlungsintensität gibt infolge der unterschiedlichen spezifischen Ionisation der verschiedenen Strahlenarten und wegen des Beitrags der  $\alpha$ -Strahlungen keinen Aufschluß über die Ionisationsverhältnisse in der Luft. Nach ISRAEL (3) können folgende Beiträge zur Ionisation der bodennahen Luftschicht angegeben werden:

Gesamtionisation

ca. 10 Ionen/cm<sup>3</sup>.sec

davon:

Luftaktivität

4,6

Ionen/cm<sup>3</sup>.sec

Bodenstrahlung

4

Ionen/cm<sup>3</sup>.sec

Kosmische Strahlung

1,5 ... 1,8

Ionen/cm<sup>3</sup>.sec

Der im Vergleich zur Zählrohrmessung höhere Anteil der Luftaktivität kommt daher, daß hier auch die  $\alpha$ -Strahlung erfaßt wird.

## 2.112 Methodik

Die Strahlung im Luftraum, auch als "Umgebungsstrahlung" bezeichnet, läßt sich grundsätzlich mit Ionisationskammer, Zählrohr oder Szintillationszähler messen. Die Wahl des Detektors hängt neben praktischen Erwägungen von der Aufgabenstellung ab.

Besteht primär die Absicht, Dosisleistungsmessungen etwa zur Kontrolle der äußeren Strahlenbelastung von Personen durchzuführen, so ist eine Ionisationskammer vorzuziehen, die für  $\gamma$ -Strahlung eine direkte Eichung in rem/h zuläßt und bei genügender Größe der Kammer auch den Nulleffekt zu messen gestattet.

Zur empfindlichen  $\beta$ - und  $\gamma$ -Messung von Aktivitätskonzentrationen ist unter Umständen das Zählrohr besser geeignet, allerdings wird man sich im allgemeinen auf eine Zählratenmessung beschränken müssen, da einer Eichung in absoluten Einheiten größere Schwierigkeiten entgegenstehen. Die Ansprechwahrscheinlichkeit des Zählrohres hängt unter anderem von Art und Energie der zu messenden Strahlung ab, d.h. also von der im allgemeinen unbekannten Nuklidverteilung, so daß eine Eichung immer nur für einen bestimmten Strahler bzw. ein Strahlergemisch Gültigkeit besitzt. Allgemein läßt sich nur sagen, daß  $\beta$ -Teilchen, deren Energie ausreicht, die Zählrohrwand zu durchdringen und die in das empfindliche Zählvolumen gelangen, mit annähernd 100 % Nachweiswahrscheinlichkeit gezählt werden, während das Ansprechvermögen für  $\gamma$ -Quanten in der Größenordnung von 1 % liegt. Bei konstantem Strahlergemisch und räumlich homogener Aktivitätsverteilung besteht allerdings nach MÜLLER (4) unter idealisierten Bedin-

gungen (kugelförmiger Detektor im unendlichen Raum) die Möglichkeit, der Impulsrate rechnerisch eine spezifische Aktivität zuzuordnen, nachdem die Ansprechwahrscheinlichkeit (effektiver Querschnitt) des Zählrohrs experimentell bestimmt worden ist.

Der Szintillationszähler findet in der Praxis der Luftüberwachung seltener Anwendung, weil er zu hohe Anforderungen an die Temperatur- und Hochspannungskonstanz stellt und einen größeren Aufwand voraussetzt. In Verbindung mit einem Spektrometer gestattet er allerdings, falls genügend große Aktivitätskonzentrationen vorliegen, eine Analyse der Luft-Kontamination, was für den Fall radioaktiver Emissionen unter Umständen wichtige Schlußfolgerungen für den Reaktorbetrieb zulassen würde, da die maximal zulässigen Konzentrationen von der Nuklidsorte abhängen.

Wir führen die Messung der Umgebungsstrahlung hauptsächlich mit Zählrohren durch, wobei dünnwandige Großflächenzählrohre vom Typ BZ 120 (Wandstärke:  $50 \text{ mg/cm}^2$ ) und Halogenzählrohre vom Typ FHZ 79 (Wandstärke:  $25 \text{ mg/cm}^2$ ) zur Anwendung gelangen, die im Auslösebereich betrieben werden und für  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlung empfindlich sind.

Zwei kontinuierlich betriebene Zählrohre vom Typ BZ 120, davon eines mit 1 mm Messing abgeschirmt, sind zur Eliminierung der  $\beta$ -Strahlung aus dem Boden auf dem Dach unserer Luftmeßstation in 9,3 m Höhe über dem Erdboden auf einem 5,5 m hohen Mast montiert. Über die Abhängigkeit der  $\beta$ -Impulsrate von der Höhe über dem Boden gibt Abb. 1 Auskunft. Die Impulse werden über Kathodenfolger einem Ratemeter mit Schreiber zugeführt.

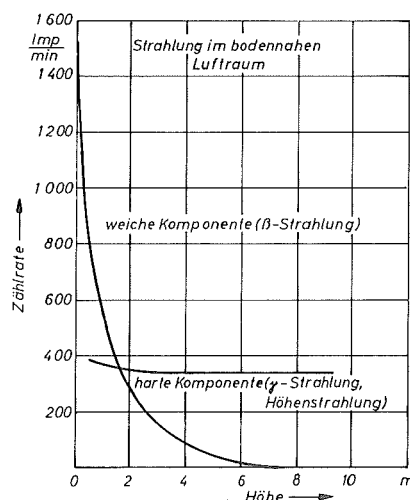


Abb. 1. Harte und weiche Komponente der Strahlung im bodennahen Luftraum. (gemessen mit Zählrohr BZ 120)

Zwei ähnliche kontinuierlich registrierende Luftmeßstationen, ausgerüstet mit dem unempfindlicheren Halogen-Zählrohr FHZ 79, befinden sich auf dem Atomforschungsgelände und in Hambach. Bis Mitte 1961 sollen die Meßstationen des inneren und äußeren Überwachungsringes errichtet bzw. vervollständigt werden, wofür eine jeweils einheitliche Ausrüstung mit Zählrohren vom Typ G 24 H bzw. FHZ 85 vorgesehen ist.

Für diskontinuierliche Messungen in der Umgebung des Forschungszentrums wird ein Strahlungsmeßwagen mit eigener Stromversorgung eingesetzt. Außer der Gesamtimpulsrate ( $\beta$ -,  $\gamma$ - und Höhenstrahlung) wird nach Abschirmung des Zählrohres BZ 120 mit 1 mm Messing auch die durchdringende Strahlung allein gemessen. Die Differenz der Impulsraten wird der  $\beta$ -Strahlung zugeordnet, wobei sekundäre Effekte in der Abschirmung (Absorption von  $\gamma$ -Quanten, Bildung von Photoelektronen, Auslösung von Bremsstrahlung) vernachlässigt werden. Das Zählrohr ist bei diesen Messungen in 2,5 m Höhe über dem Erdboden an der linken hinteren Ecke des Meßwagenaufbaus montiert, um einen möglichst großen Raumwinkel zu erfassen.

Zur kontinuierlichen Überwachung der Dosisleistung ist eine Ionisationskammeranlage eingesetzt.

### 2.113 Meßergebnisse

Die Ergebnisse der kontinuierlichen Routinemessungen der Strahlung im Luftraum sind zusammen mit anderen physikalischen und meteorologischen Meßresultaten in Abb. 11 graphisch dargestellt und zeigen den zeitlichen Verlauf der Umgebungsstrahlung.

Die in der Umgebung diskontinuierlich mit und ohne Abschirmung gemessenen Impulsraten sind aus Tab. 4 zu ersehen.

### 2.114 Diskussion

Da, wie oben erwähnt, das Ansprechvermögen von Zählrohren von der unbekannten Zusammensetzung der Strahlung abhängt, läßt sich die Impulsrate nicht in absoluten Aktivitätseinheiten ausdrücken. Selbst bei bekanntem Spektrum der Luftaktivität würde eine experimentelle Eichung an der

Tab. 4.

Strahlung im Luftraum in Imp./min.  
(gemessen in 2,5m Höhe mit Zählrohr BZ 120,  $\gamma$ -Strahlung mit 1mm Messing-Abschirmung)

Datum	Forschungs- zentrum		Jülich-Süd (Labor)		Jülich (Wasserwerk)		Stetternich (Jägersruh)		Hambach (Wasserwerk)		Daubenrath	
	B+ $\gamma$	$\gamma$	B+ $\gamma$	$\gamma$	B+ $\gamma$	$\gamma$	B+ $\gamma$	$\gamma$	B+ $\gamma$	$\gamma$	B+ $\gamma$	$\gamma$
4.1.	328	262	347	296	344	274	350	293	352	297		
11.1.	296	290	380	338	396	327	366	319	356	303		
18.1.	273	262	336	289	332	292	336	291	308	288		
25.1.	315	268	429	354	378	345	382	323	392	339		
1.2.	301	265	389	334	364	331	375	315	356	334		
8.2.	338	300	355	311	396	335	386	318	404	349		
15.2.	297	284	393	342	350	315	357	315	351	332		
22.2.	392	319	478	394	448	395	479	409	438	351		
29.2.	250	243	393	290	311	304	318	288	315	294		
7.3.	279	283	378	344	359	355	367	327	350	316		
14.3.	301	270	392	337	375	361	378	328	363	334		
21.3.	291	287	389	351	380	352	385	335	367	334		
28.3.	308	294	418	362	356	337	368	333	354	318		
4.4.	303	283	410	354	358	329	365	320	350	320		
11.4.	310	292	403	358	405	378	488	464	370	337		
19.4.	294	289	381	339	397	357	371	320	345	335		
29.4.	375	364	280	267	363	318	348	322	349	326		
2.5.	305	295	381	344	360	356	366	337	373	329		
9.5.	296	263	373	294	348	317	306	304	363	327		
16.5.	296	270	367	328	329	219	339	300	307	297		
23.5.	289	255	282	347	382	327	359	302	351	299		
30.5.	285	265	-	-	352	319	336	298	339	308	336	309
7.6.	282	257	387	323	347	299	331	315	319	347	358	323
13.6.	329	280	375	340	374	328	346	309	345	313	352	324
20.6.	302	281	364	327	325	295	327	276	305	295	377	338
27.6.	297	283	373	324	335	307	344	288	318	287	336	312
4.7.	311	286	331	296	363	332	395	301	386	333	355	316
12.7.	310	284	415	351	405	364	376	329	316	299	369	338
18.7.	290	280	406	377	392	370	387	340	333	316	360	344
25.7.	270	285	383	343	391	357	319	310	322	298	299	320
1.8.	306	276	351	341	347	325	273	246	379	334	344	312
8.8.	316	298	465	360	422	364	388	345	344	316	400	368
15.8.	304	292	369	351	366	332	372	299	332	301	384	352
22.8.	-	256	327	300	-	288	-	258	-	-	-	-
29.8.	273	265	341	315	326	305	287	276	306	264	347	320
5.9.	264	264	350	323	320	299	281	274	305	273	324	323
12.9.	294	277	348	320	314	299	299	294	296	279	346	323
19.9.	299	261	346	331	344	318	309	278	314	298	361	321
26.9.	270	247	324	310	314	295	296	270	301	270	325	318
3.10.	276	255	322	305	338	305	296	275	296	276	330	312
10.10.	282	260	345	318	333	316	328	299	332	307	362	318
17.10.	283	254	336	312	304	293	286	258	285	264	320	298
24.10.	282	273	353	324	318	292	292	266	286	278	332	316
31.10.	273	261	353	319	324	295	302	277	307	283	338	301
7.11.	274	322	320	308	324	313	293	296	300	282	326	313
14.11.	266	247	353	343	319	310	310	287	304	300	327	317
21.11.	314	258	329	293	376	386	429	483	502	371	499	338
28.11.	270	253	332	365	299	276	289	273	283	283	317	353
5.12.	266	255	320	312	312	290	273	265	288	277	324	304
12.12.	256	240	331	315	329	291	332	319	305	278	327	314
19.12.	284	282	321	373	342	313	336	310	309	288	339	315
27.12.	287	273	350	324	309	298	323	313	298	289	348	320

Schwierigkeit scheitern, die bei der Luftmessung vorliegenden geometrischen Verhältnisse zu reproduzieren, da die mittlere Reichweite von  $\gamma$ -Strahlung in Luft mehrere hundert Meter beträgt. Die Direktmessung der Umgebungsstrahlung mit Zählrohren liefert also nur Relativwerte, die in der Einheit Imp/min angegeben werden.

Der absolute Meßfehler ist durch die statistische Schwankung  $\sqrt{N}$  der gemessenen Impulszahl  $N$  gegeben. Daraus berechnet sich der mittlere Relativfehler zu

$$\sigma = \frac{1}{\sqrt{n \cdot t}} \quad \text{für diskontinuierlichen Zählbetrieb (1)}$$

$$\sigma = \frac{1}{\sqrt{2 n \tau}} \quad \text{für kontinuierlichen Ratemeter-Betrieb (2)}$$

$n$  = Zählrate im Imp/min

$t$  = Meßzeit in min

$\tau$  = Dämpfungskonstante des Ratemeters in min

Durch geeignete Zeit- oder Impulsvorwahl bzw. Vorgabe der Dämpfungskonstanten des Ratemeters wird der statistische Fehler für Messungen mit dem Zählrohr BZ 120 unter 3 % gehalten. Für die unempfindlicheren Zählrohre FHZ 79 beträgt die statistische Schwankung bei einem Nulleffekt von 60 Imp/min und einer Dämpfungskonstante von 90 sec etwa 7 %. Eine Totzeitkorrektur erübrigt sich bei den vorliegenden niedrigen Impulsraten.

Frühere Messungen haben ergeben, daß bei ungeschützt im Freien betriebenen Zählrohren beträchtliche Kontaminationen auftreten können. In einem Falle wurde im Laufe von 6 Monaten eine Verdoppelung der Zählrate festgestellt. Dabei waren 80 % der radioaktiven Verseuchung auf dem Drahtschutzkorb des Zählrohres lokalisiert und konnten mit diesem zusammen entfernt werden. Zur Vermeidung von Kontaminationen schützen wir die Zählrohre seitdem mit Plastikhüllen, die monatlich ausgewechselt werden. Trotzdem haben wir schon Erhöhungen des Nulleffektes um +20 % infolge Verseuchung der Plastikhüllen beobachten können.

Die Herkunft der Kontaminationen kann auf zwei Ursachen zurückgeführt werden:

Erstens werden die Zählrohre durch radioaktiven Staub oder Niederschläge verseucht. Besonders bei (beginnendem) Regen, durch den radioaktive Partikel aus der Troposphäre ausgewaschen und auf dem Zählrohr und seiner Umgebung niedergeschlagen werden, kann häufig ein Anstieg der Zählrate festgestellt werden. Diese Erhöhung des Nulleffektes scheint mit der mittleren Halbwertszeit der Emanationsfolgeprodukte abzuklingen. Auch bei Nebel ist von anderer Seite(2) eine vorübergehende Erhöhung der Impulsrate festgestellt worden.

Zweitens besteht die Möglichkeit, daß das Zählrohr als geerdeter Leiter im luftelektrischen Feld eine elektrostatische Filterwirkung auf radioaktive Aerosole ausübt und dadurch eine Anreicherung auf der Zählrohrwand bzw. seiner Hülle auftritt. Diese Deutung wird auch dadurch nahegelegt, daß bei herannahendem Gewitter schon vor Einsetzen des Regens eine Erhöhung der Zählrate beobachtet werden kann.

Die insbesondere bei Inversionswetterlagen zu erwartenden Maxima der Luftaktivität konnten infolge der Überlagerung der intensiveren Boden- und Höhenstrahlung nicht eindeutig nachgewiesen werden.

Zusammenfassend läßt sich zur Luftüberwachung mit Zählrohren folgendes sagen: Es handelt sich hier um eine einfache Methode, die nur Relativwerte der Strahlung im Luftraum liefert, aber keine Aufschlüsselung in Bodenstrahlung, Höhenstrahlung und Luftaktivität sowie keine Spezifizierung der Nuklidverteilung der Luftaktivität zuläßt. Bezüglich der Nachweisempfindlichkeit sind die später zu beschreibenden anreichernden Verfahren der direkten Messung weit überlegen. Die Anreicherung bedingt aber einerseits einen gewissen Zeitverlust und gestattet andererseits nicht die Messung gasförmiger Aktivitäten. Trotz aller Einschränkungen kann deshalb auf eine Sofortmessung der gasförmigen Emissionen von kerntechnischen Anlagen mit Zählrohren bzw. Szintillationsdetektoren oder Ionisationskammern nicht verzichtet werden. Speziell kann die Zählrohrempfindlichkeit als ausreichend betrachtet werden zum Nachweis von Luftkontaminationen mit A-41 in der Größenordnung der für die Gesamtbevölkerung maximal zulässigen Konzentration.



## 2.12 Aktivität der Aerosole

### 2.121 Grundlagen

Abgesehen von konzentrierteren Vorkommen in Erzen und Gesteinen sind feinverteilte Vorkommen von Elementen der natürlich radioaktiven Familien überall im Boden vorhanden. HULTQUIST (5) gibt als Mittelwert eine Ra-Konzentration im Boden von  $10^{-12}$  g/g und eine Th-Konzentration von  $10^{-5}$  g/g an. Mit den Halbwertszeiten von Ra und Th ergeben sich daraus spezifische Aktivitäten von je  $10^{-12}$  c/g. Die gasförmigen Folgeprodukte Rn und Tn gelangen durch Diffusion in den Luftraum, wobei Rn durch seine Halbwertszeit von 3,8 d gegenüber Tn (55 sec) bevorzugt ist. Über Messungen des Rn/Tn-Verhältnisses wird an späterer Stelle berichtet.

Die festen Emanationsfolgeprodukte (s. Tab. 5) lagern sich spätestens im Verlauf weniger Minuten an die Aerosole an, die aus feinverteilten Suspensionen von festen Schwebstoffen und Tröpfchen bestehen. Auch die nicht gasförmigen künstlichen Aktivitäten in der Luft, die aus kerntechnischen Anlagen und in erster Linie aus dem Atombomben-Fallout stammen, sind an die Aerosole adsorbiert. Sofern sie aus dem radioaktiven Fallout stammen, haben sie verhältnismäßig große Halbwertszeiten, da das Spaltproduktgemisch mit zunehmendem zeitlichem Abstand von der Atombombenexplosion immer langlebiger wird. In der Umgebung kerntechnischer Anlagen sind, soweit Spaltprodukte betroffen sind, vorwiegend kurzlebige Nuklide zu messen.

Von großer Bedeutung für die Berechnung der Aerosolaktivität aus den Zerfallsraten der Luftstaubproben ist die Frage des radioaktiven Gleichgewichtes in der Atmosphäre: In unmittelbarer Bodennähe liegt zweifellos kein Gleichgewicht der natürlichen radioaktiven Nuklide vor, da der Boden nur Rn und Tn nicht aber die Emanationsfolgeprodukte exhaliert. Erst in einer von den Halbwertszeiten abhängigen Höhe kann für die verschiedenen Folgeprodukte der Anreicherungsgrad 1 erreicht werden. Zum Beispiel kommt es bei einem mittleren Vertikalaustauschkoeffizienten von 0,1 g/cm.sec für RaA in 1 bis 2 m, für RaC in 10 bis 20 m Höhe zur Ausbildung radioaktiven Gleichgewichts (vgl.(6)). Für RaD bis RaF ist allerdings kein Gleichgewicht zu erwarten, da die Halbwertszeit von RaD mit 19,4 a groß ist gegen die mittlere Verweilzeit der Aerosole in der Atmosphäre, welche durch Selbst-

Tab.5

## Die Zerfallsreihen der Radium- und Thorium-Emanation

Rn-Zerfallsreihe					Th-Zerfallsreihe				
Element	Strahlungsenergie MeV			Halbwerts- zeit	Element	Strahlungsenergie MeV			Halbwerts- zeit
	$\alpha$	$\beta$	$\gamma$			$\alpha$	$\beta$	$\gamma$	
Rn	5,49	—	—	3,825 d	Th	6,28	—	—	54,5 sec
RaA	5,99	$\beta$	—	3,05 min	ThA	6,77	$\beta$	—	0,158 "
RaB	—	0,65	—	26,8 "	ThB	—	0,36	—	10,6 h
RaC	5,50	3,17	1,8	19,7 "	ThC	6,05	2,20	—	60,5 min
RaC	7,68	—	—	$1,5 \cdot 10^{-4}$ sec	ThC	8,77	—	—	$3 \cdot 10^{-7}$ sec
RaC	—	1,80	—	1,32 min	ThC	—	1,82	2,62	3,1 min
RaD	—	0,25	0,047	19,4 a	ThD	—	—	—	stabil
RaE	—	1,17	—	5,04 d					
RaF	5,30	—	—	139 d					
RaG	—	—	—	stabil					

Tab.6

## Verteilung natürlicher radioaktiver Gase und Aerosole

bei mittlerem Vertikalaustausch in Luft nach (9)

(auf 100 relative Einheiten in 0,01 m Höhe normiert)

Höhe über dem Erdboden in m	0,01	0,1	1	10	100
Rn-Akt. in rel. Einheiten	100	98	95	87	69
Th-Akt. in rel. Einheiten	100	82	50	9	0
ThB-Akt. in rel. Einheiten	100	97	91	76	49



Bei der Prüfung des radioaktiven Gleichgewichtes der Tn-Reihe ist zu berücksichtigen, daß infolge der geringen Halbwertszeiten von Tn eine schnelle Abnahme der Tn-Konzentration mit der Höhe vorliegt. Die Halbwertshöhe von Tn beträgt nach Tab. 6 nur 1 m, für ThB dagegen 100 m. (Für Rn gibt ISRAEL eine Halbwertshöhe von 1000 m an). Daher ist ein radioaktives Gleichgewicht für Tn und seine Folgeprodukte im allgemeinen nicht zu erwarten.

## 2.122 Methodik

Die Anlagerung der nicht gasförmigen Luftaktivitätsanteile an die Aerosole erlaubt eine Anreicherung der Radioaktivität durch Ausfilterung der Schwebstoffe aus größeren Luftvolumina, wobei mechanische und elektrostatische Filter Verwendung finden können (10). Unsere Messungen der Aerosolaktivität werden nach beiden Probennahmeprinzipien durchgeführt.

Mit einem tragbaren Staubprobensammler (Friesseke u. Hoepfner in Lizenz der AB Atomenergi Stockholm) werden diskontinuierlich nach dem elektrostatischen Abscheideverfahren Aerosolproben genommen. Dabei wird mit Hilfe eines Staubsaugergebläses von  $32 \text{ m}^3/\text{h}$  Saugleistung aerosolhaltige Luft aus einer Höhe von 10 bzw. 2,5 m über dem Boden angesaugt und an einer Entladungsstrecke (8 KV) vorbeigeführt. Durch die Koronaentladung wird der Staub mit einem Filterwirkungsgrad von  $0,5 \pm 10 \%$  auf einer Aluminiumschale von 6 cm Durchmesser niedergeschlagen. Nach Angaben der Hersteller ist der Filterwirkungsgrad vom Luftdurchsatz weitgehend unabhängig und besitzt der Filtermechanismus keine Selektivität für Teilchen  $< 1 \mu$  (vgl. NEUWIRTH (11)).

Die für eine optimale Anreicherung erforderliche Sammelzeit hängt von der Halbwertszeit der Aerosolaktivität und der sekundlich abgeschiedenen Teilchenzahl  $\gamma Qn$  ab, wobei  $\gamma$  den Filterwirkungsgrad,  $Q$  den Luftdurchsatz und  $n$  die Zahl der Teilchen im  $\text{cm}^3$  bedeuten.

Für die Änderung der auf dem Filter niedergeschlagenen Teilchenzahl  $N_i$  des  $i$ -Folgeproduktes einer radioaktiven Zerfallsreihe gilt:

$$\frac{d N_i}{d t} = \eta Q n_i - \lambda_i N_i + \lambda_{i-1} N_{i-1} \quad (3)$$

$n_i$  = Zahl der Atome des  $i$ .- Folgeproduktes im  $\text{cm}^3$  Luft.

Auf dem Filter herrscht also Gleichgewicht zwischen Zerfallsrate und Zuwachsrates, wenn

$$\lambda_i N_i = \eta Q \sum_{k=1}^i n_k \quad (4)$$

Bei den Rn-Folgeprodukten im Luftraum RaA, RaC, RaC' und RaC'' wird näherungsweise radioaktives Gleichgewicht angenommen, d.h. es soll gelten:

$$\lambda_i \cdot n_i = \text{constans} = A \quad (5)$$

wobei A die Rn-Aktivitätskonzentration in Luft bedeutet. Daraus folgt für das Filtergleichgewicht:

$$A_i = \lambda_i \cdot N_i = \eta Q \cdot A \sum_{k=1}^i \frac{1}{\lambda_k} \quad (6)$$

(Zerfallsrate)                      (Zuwachsrates)

Für eine vorgegebene Aktivitätskonzentration ist die Gleichgewichtsaktivität um so größer, je höher die Abscheidung  $\eta Q$  und je kleiner die Zerfallskonstanten sind. Das Gleichgewicht wird um so schneller erreicht, je langlebiger die Aktivitäten sind.

Die Sammelzeit beträgt bei unseren Messungen 1 Stunde. Aus den Lösungen der Differentialgleichungen (3) geht hervor, daß in dieser Zeit 70 - 80 % der Filtergleichgewichtswerte für die langlebigen Folgeprodukte RaB und RaC erreicht werden.

Die Ausmessungen der Luftstaubpräparate erfolgen unter einem fensterlosen Methan-Durchflußzählrohr (FH 514), das im Proportionalbereich je nach Wahl der Betriebsspannung im  $\alpha$ - oder  $\beta$ -Plateau betrieben wird, so daß die  $\alpha$ - und  $\beta$ -Zerfallsraten getrennt gemessen werden können. Im  $\beta$ -Plateau wird außer der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Strahlung aus dem Präparat (die  $\gamma$ -Strahlung der Luftstaubprobe braucht wegen ihrer kleinen Nachweiswahrscheinlichkeit nicht berücksichtigt zu werden) auch noch der äußere Nulleffekt ( $\gamma$ -Quanten und harte Höhenstrahlungskomponente) gemessen, dessen Zählrate in Abzug gebracht werden muß.

Ein besonderer Vorteil der elektrostatischen Staubfilterung ist die vernachlässigbare Selbstabsorption der auf der Metalloberfläche haftenden Staubproben. Dadurch wird auch die Eichung der Zählordnung auf die Ermittlung des Geometriefaktors reduziert.

Die Kalibrierung wurde im  $\alpha$ -Bereich mit Uran, im  $\beta$ -Bereich mit KCl als Standard vorgenommen, wobei die Zählrate in Abhängigkeit von der Flächenbelegung gemessen und der Quotient aus theoretischer Zerfallsrate und gemessener Impulsrate auf die Flächenbelegung null extrapoliert wurde. Bei unendlich dünner Schichtdicke werden etwa 50 % der K-40-Zerfälle gezählt, d.h. es liegt  $2\pi$ -Geometrie vor.

Bei der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Messung frischer Proben werden zur Kleinhaltung des statistischen Zählfehlers (vgl. 2.124) 1000 Imp. vorgewählt, während die Messung der kleineren  $\alpha$ -Impulsrate aus zeitlichen Gründen auf 30 Minuten Meßzeit beschränkt werden muß und größere statistische Schwankungen der Meßwerte auftreten.

Da die Halbwertszeit von Spaltproduktgemisch etwa gleich seinem Alter ist, können die langlebigen Aktivitäten des kerntechnischen Fallout von der kurzlebigen natürlichen Aktivität der Emanationsfolgeprodukte durch mehrere Messungen mit unterschiedlicher zeitlicher Verzögerung (zeitlich fraktionierte Messung) getrennt werden. Innerhalb der natürlichen Luftaktivität kann ebenfalls eine Unterscheidung von Rn- und Tn-Folgeprodukten getroffen werden. Langlebigste Folgeprodukte beider Zerfallsreihen sind RaB mit 26,8 min und ThB mit 10,6 h Halbwertszeit. RaD und Folgeprodukte können bei der Ermittlung der Aerosolaktivität der Rn-Reihe außer acht gelassen werden, da der Anreicherungsgrad bezogen auf Rn unter 1 % (s.u.) liegt. Daraus ergibt sich die Möglichkeit einer Halbwertsanalyse der Luftstaubproben durch kontinuierliche Aufnahme der Abklingkurven. Praktisch ist es für die meisten Fälle ausreichend, die Aktivität der Aerosolpräparate sofort nach Probennahme, nach 10 h und nach einigen Tagen zu messen.

In unserem Routinemessprogramm erfolgt die Ausmessung der Proben 10 min, 1 h, 1 Tag und 4 bis 5 Tage nach der Probennahme. Innerhalb der ersten Stunden überwiegt die Aktivität der Rn-Folgeprodukte die übrigen Aktivitäten um ca. 2 Größenordnungen. Nach 1 Tag ist, abgesehen vom RaD und

seinen Folgeprodukten von der natürlichen Radioaktivität nur noch der Anteil der Tn-Reihe nachweisbar. Nach 4 Tagen liegen praktisch nur noch langlebige Fallout-Aktivitäten und RaD mit Folgeprodukten vor.

Die zum Zeitpunkt der Probennahme in der Luft vorhandenen Aktivitätskonzentrationen der Rn-Reihe (einschließlich Rn), der Tn-Reihe (einschließlich Tn) und des langlebigen Anteils (künstliche Radioaktivität und RaD, RaE, RaF) jeweils in  $\text{pc/m}^3$  berechnen sich nach folgenden Formeln:

$$A_{\alpha}^{\text{Rn}} = \frac{0,45}{Q \cdot T} f_{\alpha} n_{\alpha} (t \leq 1h) K_{\alpha}(t) \quad (7)$$

Rn-Reihe:

$$A_{\beta}^{\text{Rn}} = \frac{0,45}{Q \cdot T} f_{\beta} \left\{ n_{\alpha+\beta} (t \leq 1h) - n_{\alpha} (t \leq 1h) \right\} K_{\beta}(t) \quad (8)$$

$$A_{\alpha}^{\text{Tn}} = \frac{0,45}{Q \cdot T} f_{\alpha} \left\{ n_{\alpha} (t = 1d) - n_{\alpha} (t \geq 4d) \right\} \cdot 14 \quad (9)$$

Tn-Reihe:

$$A_{\beta}^{\text{Tn}} = \frac{0,45}{Q \cdot T} f_{\beta} \left\{ \left[ n_{\alpha+\beta} (t = 1d) - n_{\alpha} (t = 1d) \right] - \left[ n_{\alpha+\beta} (t \geq 4d) - n_{\alpha} (t \geq 4d) \right] \right\} \cdot 8 \quad (10)$$

$$A_{\alpha} = \frac{0,45}{Q \cdot T} f_{\alpha} n_{\alpha} (t \geq 4d) \quad (11)$$

langlebiger  
Anteil:

$$A_{\beta} = \frac{0,45}{Q \cdot T} f_{\beta} \left\{ n_{\alpha+\beta} (t \geq 4d) - n_{\alpha} (t \geq 4d) \right\} \quad (12)$$

Dabei bedeuten:

$n_{\alpha}(t)$  = Nettozählrate gemessen im  $\alpha$ -Plateau

$n_{\alpha+\beta}(t)$  = Nettozählrate gemessen im  $\beta$ -Plateau

$K_{\alpha}(t)$  = zeitl. Korrekturfaktor für  $\alpha$ -Strahler  
der Rn-Reihe

$K_{\beta}(t)$  = zeitl. Korrekturfaktor für  $\beta$ -Strahler  
der Rn-Reihe

$\eta$  = Filterwirkungsgrad =  $0,5^{(1)}$

<sup>(1)</sup> Nach neueren Messungen von TRITREMEL (12) soll der Filterwirkungsgrad nur 0,22 betragen.

$$Q = \text{Luftdurchsatz} = 32 \text{ m}^3/\text{h}$$

$$T = \text{Sammelzeit} = 1 \text{ h}$$

$$f_{\alpha} = \begin{array}{l} \text{Korrekturfaktor für Zählempfindlichkeit} \\ \text{bei } \alpha\text{-Messung} \end{array} = 3,2$$

$$f_{\beta} = \begin{array}{l} \text{Korrekturfaktor für Zählempfindlichkeit} \\ \text{bei } \beta\text{-Messung} \end{array} = 1,8$$

Die Korrekturfaktoren  $K_{\alpha}$  und  $K_{\beta}$  berücksichtigen den Zerfall der Staubproben während des Aufsammlens und während der Wartezeit bis zur Messung. Sie wurden für Sammelzeiten von 1 h bzw. 30 min unter Voraussetzung radioaktiven Gleichgewichts aus den Lösungen der Differentialgleichungen (3) für die Rn-Folgeprodukte in Abhängigkeit von der nach der Sammlung bis zur Messung verstrichenen Verzögerungszeit berechnet und sind für einstündige Probennahme der Abb.3 zu entnehmen. Sie sind allerdings nur unter der Voraussetzung anwendbar, daß die Zählrate zu einer Zeit gemessen wurde, zu der die Aktivität der langlebigen Tn-Folgeprodukte und des

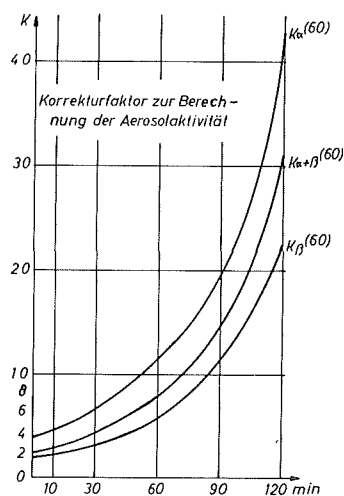


Abb.3. Korrekturfaktor zur Berücksichtigung des zeitlichen Abklingens der Aerosolproben bei einer Sammelzeit von 60 min



Fallout noch keinen merklichen Bruchteil der durch die Rn-Folgeprodukte bestimmten Gesamtzählrate ausmachte. Dies gilt bei dem in der Luft vorliegenden Konzentrationsverhältnis von Rn und Tn (vgl. 2.124) in guter Näherung innerhalb der ersten Stunde nach Probennahme. (Nach 2 Stunden ist der Anteil der Tn-Folgeprodukte schon nicht mehr zu vernachlässigen, und man erhält eine um etwa 20 % zu große Aktivitätskonzentration.)

Bei der Berechnung der Aktivität der Rn-Reihe ist eine Berücksichtigung der um 1 - 2 Größenordnungen geringeren Aktivität der Tn-Reihe und des vernachlässigbaren langlebigen Anteils nicht erforderlich. Die Aktivität der Rn-Reihe ist daher praktisch auch mit der Gesamtaktivität der Aerosole identisch.

Für die Tn-Reihe ist die Ermittlung der Korrekturfaktoren besonders einfach, da nur noch das langlebige ThB und seine Folgeprodukte, die im Gleichgewicht stehen und mit der Halbwertszeit von ThB zerfallen, vorhanden sind. Durch Anwendung des Abklinggesetzes in seiner einfachsten Form und Einbeziehung der kurzlebigen Tn- und ThA-Aktivität ergeben sich für die  $\alpha$ - und  $\beta$ -Messung nach 1 Tag die Korrekturfaktoren 14 bzw. 8. Da die Tn-Folgeprodukte und der langlebige Anteil vergleichbare Aktivitäten aufweisen, ist die nach 4 Tagen gemessene Zählrate von der Zählrate nach 1 Tag zu subtrahieren.

Die spezifische Aktivität des langlebigen Anteiles wird aus der nach 4 - 5 Tagen gemessenen Zählrate bestimmt, wobei die Korrekturfaktoren gleich 1 zu setzen sind, weil in der genannten Wartezeit praktisch noch kein Abklingen der langlebigen Fallout-Aktivität zu erwarten ist.

Neben den vorhergehend beschriebenen Stichprobenmessungen nach dem elektrostatischen Staubsammelverfahren führen wir nach der Methode der mechanischen Filterung mit einem Bandfiltergerät (Friesseke u. Hoepfner, Typ FH 59) kontinuierliche Messungen der Radioaktivität der Aerosole durch. Dabei wird Luft aus 10 m Höhe über dem Boden durch ein Faserfilter gesaugt. Der Filterwirkungsgrad beträgt nach Herstellerangaben 70 %. Allerdings ist die Aerosolabscheidung selektiv, da der Filterwirkungsgrad von der Teilchengröße abhängig ist (die Abscheidung erfolgt bei größeren Aerosolteilchen hauptsächlich durch den "Trägheitseffekt", bei kleineren Teilchen durch den "Diffusionseffekt"). Bei Teilchengrößen zwischen 0,1 und 1  $\mu$  hat der Fil-

terwirkungsgrad im allgemeinen ein Minimum (vgl. z.B. ZUMACH (13)). Das Maximum der Häufigkeitsverteilung der Aerosoldurchmesser liegt nach WILKENING (14) zwischen 0,1 und 0,01  $\mu$ .

Zur getrennten Ermittlung der kurzlebigen und langlebigen Aktivität wird das Filterband durch zwei geschlitzte,  $\beta$ -empfindliche Szintillationsdetektoren geführt. Die erste Messung erfolgt mit einer durch die gewünschte hohe Empfindlichkeit bedingten zeitlichen Verzögerung von ca. 3 h (s.u.). (Bei geringeren Anforderungen an die Empfindlichkeit lassen sich auch Verzögerungen von 30 oder 90 min einstellen). Nachdem das Filterband über eine Reihe von Umlenkrollen gelaufen ist, wird die langlebige Aktivität nach 4 Tagen gemessen. Von der früher üblichen Verzögerung um 2 Tage mußte nach der allgemein zu beobachtenden Abnahme der Falloutaktivität abgegangen werden, da die Aktivität des langlebigsten Folgeprodukts der Tn-Reihe (ThB mit 10,6 h Halbwertszeit) nach 2 Tagen (4,5 Halbwertszeiten) noch eine der Spaltproduktaktivität vergleichbare Größenordnung einnimmt. Dieser Sachverhalt drückt sich in der parallelen Tendenz des zeitlichen Verlaufes von kurzlebiger und langlebiger Aktivität aus. Nach Übergang zu einer Verzögerung um 4 Tage (9 Halbwertszeiten von ThB) ist die Korrelation der langlebigen Aktivität mit der natürlichen Aktivität, wie bereits im Jahresbericht 1959 (1) vorausgesagt, nicht mehr vorhanden.

Die Kalibrierung der Meßköpfe wird mit Hilfe von Sr-90-Eichstrahlern vorgenommen. Die Impulsraten werden mit großer Zeitkonstante von zwei Schreibern registriert.

Bei der Umrechnung der relativen Einheit Imp/min in absolute Einheiten der Aktivitätskonzentration ( $\text{pc/m}^3$ ) ergeben sich gewisse Schwierigkeiten. Diese sind dadurch bedingt, daß einerseits die Verzögerungszeit der ersten Messung nicht eindeutig definiert ist (s.u.) und andererseits bei dem zur Erzielung hoher Meßempfindlichkeit von uns gewählten kleinsten Bandvorschub (20 mm/h) die Aktivität der Rn-Folgeprodukte bei der ersten Messung schon so weit abgeklungen ist, daß die Tn-Folgeprodukte nicht mehr zu vernachlässigen sind. Nimmt man einen Tn-Aktivitätsanteil in Luft von 2 % an, so beträgt der Anteil der langlebigen Tn-Folgeprodukte an der Aktivität auf dem Filter 3 h nach Sammlung schon etwa 30 %. Da das Rn/Tn-Verhältnis von meteorologischen bzw. jahreszeitlichen Bedingungen abhängig sein kann, läßt sich eine einigermaßen strenge zeitliche Korrektur der Filteraktivi-

tät auf den Sammelzeitpunkt durch Lösung der Differentialgleichungen für den Zerfall der Rn- und Tn-Folgeprodukte analog der Berechnungsmethode bei der elektrostatischen Filterung nicht durchführen.

Zur näherungsweisen Berechnung der Aerosolaktivität bestimmen wir stattdessen aus der effektiven Halbwertszeit T des Aktivitätsgemisches auf dem Filter einen zeitlichen Korrekturfaktor K und ermitteln damit die Aktivität zum Zeitpunkt der Probennahme.

Für die Ableitung von T wird zunächst die effektive Halbwertszeit  $T_{Rn}$  der langlebigen Rn-Folgeprodukte RaB und RaC benötigt. Die Menge der Rn-Folgeprodukte auf dem Filter ergibt sich (Gleichgewicht bei Probennahme vorausgesetzt) aus den Differenzialgleichungen

$$dN_1 = \lambda_1 N_1 dt \quad (13)$$

$$dN_2 = \lambda_1 N_1 dt - \lambda_2 N_2 dt \quad (14)$$

mit der Nebenbedingung  $N_1(0) = N_2(0) = N_0$  zu

$$N = N_0 e^{-\lambda t} \\ N_1 + N_2 = N_0 \left\{ e^{-\lambda_1 t} + e^{-\lambda_2 t} + \frac{1}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \right\}. \quad (15)$$

Aus der effektiven Zerfallskonstanten berechnet sich die (zeitabhängige) effektive Halbwertszeit  $T_{Rn}$ , deren Mittelwert in den ersten Stunden bei 32 min liegt (vgl. Tab. 7).

Tab.7

Effektive Halbwertszeit von RaB + RaC als Funktion der Abklingzeit				
Abklingzeit t (h)	0,5	1	2	3
effektive Halbwertszeit $T_{Rn}$ (min)	35,2	33,2	32	30

Bei Einbeziehung eines x-prozentigen Anteils der Rn-Reihe an der Aerosolaktivität ergibt sich die effektive Halbwertszeit T aus der Formel

$$e^{-\frac{\ln 2}{T} t} = (1 - x) e^{-\frac{\ln 2}{T_{Rn}} t} + x \cdot e^{-\frac{\ln 2}{T_{Tn}} t} \quad (16)$$

$T_{Rn}$  = Effektive Halbwertszeit der Rn-Folgeprodukte  $\approx 32$  min

$T_{Tn}$  = Effektive Halbwertszeit der Tn-Folgeprodukte  $\approx 11$  h

Bei dem im Mittel bei uns gemessenen Verhältnis  $Rn : Tn = 50 : 1$ , d.h.  $x = 2\%$ , ergibt sich in guter Übereinstimmung mit experimentellen Abklingkurven in den ersten 3 h eine mittlere effektive Halbwertszeit von  $T = 38$  min.

Zur Ableitung des zeitlichen Korrekturfaktors K ist nun noch die Kenntnis der seit der Probennahme verstrichenen Verzögerungszeit erforderlich. Zu ihrer Berechnung sei angenommen, daß zur Zeit  $t = 0$  eine Aktivitätsspitze aufgetreten ist. Die Aktivität wird dabei über eine Filterfläche von der Länge der Bestaubungskammer ( $L = 10$  cm) verteilt. Bei einer Bandvorschubgeschwindigkeit von  $v = 2$  cm/h ergibt sich im Detektor der in Abb.4 gezeigte Verlauf der Zählrate (ausgezogene Kurve).

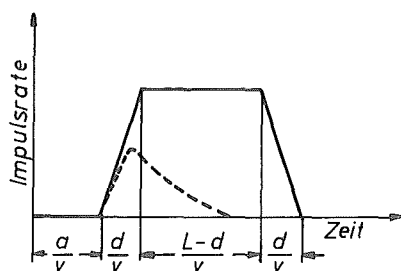


Abb.4. Schema zur Ermittlung der effektiven Verzögerungszeit in der Anzeige der Aktivitätskonzentration der Aerosole.

( $a$ =Abstand Staubkammer-Detektor=43 mm

$d$ =Detektorbreite=25 mm

$L$ =Staubkammerbreite=100 mm)

Bei langlebigen Strahlern würde man den Zeitpunkt der Filterkontamination aus dem Mittelwert des Maximalbereiches ermitteln und damit eine Verzögerungszeit der Anzeige von

$$t = \frac{1}{v} \left( a + d + \frac{L - d}{2} \right) = 5,3 \text{ h} \quad (17)$$

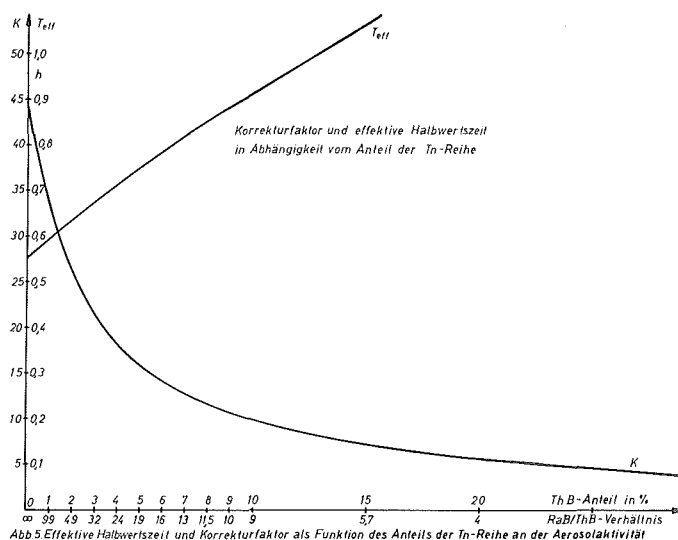
erhalten. Für kurzlebige Strahler ergibt sich dagegen durch Überlagerung

der exponentiellen Abklingfunktion eine Verschiebung des Maximums zu kleineren Zeitwerten (gestrichelte Kurve). Hat die Filterprobe eine Halbwertszeit von 38 min (angenommener Effektivwert für Emanationsfolgeprodukte), so wird der Maximalwert mit einer Verzögerung von 3 h registriert.

Der Korrekturfaktor für die nach 3 h gemessenen Zerfallsraten beträgt bei einem Nuklidgemisch mit einer mittleren effektiven Halbwertszeit von 38 min

$$K = \frac{N_0}{N} = e^{\frac{\ln 2}{T} t} = e^{\frac{0,693}{38} 60 \cdot 3} = 25 \quad (18)$$

Die Variation von T und K mit dem Tn-Anteil ist in Abb. 5 veranschaulicht.



Die Aktivitätskonzentration des Aerosols in  $\text{pc/m}^3$  ergibt sich dann aus der Formel

$$A_\beta = \frac{0,45 \cdot L \cdot K}{Q \cdot T \cdot \eta_F \cdot \eta_{\text{Det}} \cdot d} \cdot n \quad (19)$$

$n$  = Nettozählrate in Imp/min

$K$  = zeitlicher Korrekturfaktor

= 25

$L$  = Staubkammerlänge

= 10 cm

$d$  = Detektorbreite

= 2,5 cm

$Q$  = Luftdurchsatz

= 15  $\text{m}^3/\text{h}$

$T$  = Sammelzeit pro Filterelement

= 5 h

(bei 2 cm/h Bandvorschubgeschwindigkeit)

$$\begin{aligned}\eta_F &= \text{Filterwirkungsgrad} &= & 0,7 \\ \eta_{\text{Det}} &= \text{Detektorwirkungsgrad} &= & 1\end{aligned}$$

oder bei Einsetzen aller Konstanten

$$A_\beta = 0,86 \cdot n \quad \text{pc/m}^3 \quad (20)$$

### 2.123 Meßergebnisse

Die Ergebnisse der Aerosolaktivitätsmessungen nach dem diskontinuierlichen elektrostatischen Staubsammelverfahren sind unter Angabe der Tageszeit der Probennahme in Tab. 8 aufgeführt.

Diese Werte unterscheiden sich von den in den Monatsberichten angegebenen Meßresultaten, für deren Berechnung eine  $2\pi$ -Geometrie der Zählordnung angenommen worden war. Es zeigte sich nämlich bei inzwischen durchgeführten Eichungen, daß die Zählempfindlichkeit für  $\beta$ -Strahlung wegen der Rückstreuung etwas größer (ca.  $2,2\pi$ ), für  $\alpha$ -Strahlung hingegen bei kleinerem effektivem Zählvolumen wesentlich geringer (ca.  $1,3\pi$ ) ist als ursprünglich angenommen. Statt mit dem Faktor 2 waren demzufolge die  $\beta$ -Impulsraten mit dem Faktor 1,8 und die  $\alpha$ -Werte mit dem Faktor 3,2 zu korrigieren. Diese unterschiedliche Bewertung der Zählraten klärt auch zum Teil die im Jahresbericht 1959 (1) festgestellte Diskrepanz zwischen der Größe der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Aktivität der Rn-Reihe auf (vgl. 2.124).

Die Resultate der  $\beta$ -Aktivitätsmessungen der Aerosole nach der Filterbandmethode sind in Abb. 11 zusammen mit anderen kontinuierlichen Meßergebnissen dargestellt. Ab 5.8.1960 erfolgte dabei die Messung des langlebigen Anteils nach 4 Tagen, vorher (mit Ausnahme des Monats März) nach 2 Tagen.

Die Gesamtaktivität der Aerosole kann jedesmal praktisch mit der kurzlebigen Aktivität gleichgesetzt werden, da der langlebige Anteil um mehrere Größenordnungen kleiner ist. Alle Angaben erfolgen in der gebräuchlichen Dimension  $\text{pc/m}^3$ .

Tab.8

$\alpha$ - und $\beta$ -Aktivität der Aerosole								
in $\mu\text{C}/\text{m}^3$								
Probennahme			Rn - Reihe		Th - Reihe		langleb. Anteile	
Ort	Datum	Zeit	$\alpha$	$\beta$	$\alpha$	$\beta$	$\alpha$	$\beta$
Kernforschungs- anlage	4. 1.60	12.40 - 13.40	60	107			0,021	$\leq 0,04$
	18. 1.60	13.15 - 14.15	20	50			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	27. 1.60	12.00 - 13.00						
	29. 1.60	12.00 - 13.00						
	1. 2.60	12.45 - 13.45	122	83			0,009	0,10
	15. 2.60	13.00 - 14.00	32	33			$\leq 0,008$	0,18
	21. 3.60	9.40 - 10.40	68	72			0,059	$\leq 0,04$
	4. 4.60	9.15 - 10.15	27	28			0,009	0,28
	19. 4.60	11.30 - 12.30	98	90	1,7	1,9	0,036	0,08
	2. 5.60	9.05 - 10.05	11	10			$\leq 0,008$	0,13
	16. 5.60	8.45 - 9.45	89	95			$\leq 0,008$	0,15
	23. 5.60	13.23 - 14.23	22	28			$\leq 0,008$	0,05
	30. 5.60	8.28 - 9.28	11	13	0,3	1,1	$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	31. 5.60	13.00 - 14.00	29	26				
	1. 6.60	12.00 - 13.00	34	34	0,8	1,5	$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	2. 6.60	11.55 - 12.55	26	47			0,019	0,04
	3. 6.60	15.15 - 16.15	77	56			$\leq 0,008$	0,72
	7. 6.60	12.00 - 13.00	6	9				
	8. 6.60	12.30 - 13.30	17	30	0,3	1,0	$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	9. 6.60	13.23 - 14.23	10	17			0,015	0,05
	10. 6.60	14.40 - 15.40	22	17			$\leq 0,008$	0,07
	14. 6.60	12.30 - 13.30	11	16			$\leq 0,008$	0,07
	15. 6.60	13.00 - 14.00	24	20			0,012	0,04
	20. 6.60	12.00 - 13.00	15	17				
	21. 6.60	12.45 - 13.45	14	20			0,010	0,06
	22. 6.60	12.30 - 13.30	17	44	0,1	1,0	$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	23. 6.60	10.30 - 11.30	5	3			0,011	0,14
	24. 6.60	12.15 - 13.15	86	54			$\leq 0,008$	0,07
	27. 6.60	9.15 - 10.15	32	35			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	28. 6.60	9.00 - 10.00	18	8			$\leq 0,008$	0,06
	29. 6.60	9.15 - 10.15	5	11			0,009	0,11
	30. 6.60	11.20 - 12.20	4	4			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	1. 7.60	13.20 - 14.20	10	65			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	5. 7.60	10.15 - 11.15	42	48			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	6. 7.60	13.00 - 14.00	10	17			0,012	0,16
	7. 7.60	11.30 - 12.30	12	49			0,009	0,21
	8. 7.60	15.15 - 16.15	41	29			$\leq 0,008$	0,18
	11. 7.60	10.20 - 11.20	20	11				
	12. 7.60	10.20 - 11.20	10	8				
	13. 7.60	10.30 - 11.30	8	13			$\leq 0,008$	0,14
	14. 7.60	10.15 - 11.15	5	5			0,012	0,14
	15. 7.60	8.50 - 9.50	40	43			$\leq 0,008$	0,15
	18. 7.60	10.30 - 11.30	13	17			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	19. 7.60	10.25 - 11.25	7	8			$\leq 0,008$	0,13
	20. 7.60	10.15 - 11.15	18	18			$\leq 0,008$	0,07
	21. 7.60	13.40 - 14.40	27	42	0,2	$\leq 0,3$	$\leq 0,008$	0,05
	22. 7.60	10.15 - 11.15	29	26				
	25. 7.60	9.30 - 10.30	11	64				
	26. 7.60	13.00 - 14.00	20	29				
	27. 7.60	9.00 - 10.00	120	88				
	28. 7.60	8.15 - 9.15	69	72	0,6	2,4	$\leq 0,008$	0,04

Tab.8 Fortsetzung

Probenahme			Rn - Reihe		Tn - Reihe		langleb. Anteile	
Ort	Datum	Zeit	$\alpha$	$\beta$	$\alpha$	$\beta$	$\alpha$	$\beta$
Kernforschungs- anlage	29. 7.60	9.30 - 10.30	19	23			$\leq 0,008$	0,05
	1. 8.60	10.00 - 11.00	4	9				
	2. 8.60	10.15 - 11.15	22	22				
	3. 8.60	10.30 - 11.30	16	21			$\leq 0,008$	0,49
	4. 8.60	13.28 - 14.28	55	51	0,1		0,027	0,62
	5. 8.60	9.45 - 10.45		49				
	8. 8.60	9.15 - 10.15	12	78				
	9. 8.60	10.15 - 11.15	61	43			$\leq 0,008$	0,88
	10. 8.60	10.15 - 11.15	10	32				
	11. 8.60	12.50 - 13.50	119	106	8,4	1,3	$\leq 0,008$	0,35
	12. 8.60	9.40 - 10.40	13	24			$\leq 0,008$	0,12
	15. 8.60	10.00 - 11.00	16	25			$\leq 0,008$	0,09
	17. 8.60	14.15 - 15.15	27	51			$\leq 0,008$	0,10
	18. 8.60	8.05 - 9.05	154	155	1,1	0,6	$\leq 0,008$	0,18
	19. 8.60	9.15 - 10.15	6	9			0,015	$\leq 0,04$
	22. 8.60	10.50 - 11.50	8	8				
	23. 8.60	13.05 - 14.05	35	39				
	24. 8.60	10.15 - 11.15	10	17			$\leq 0,008$	0,10
	25. 8.60	8.00 - 9.00	103	114			0,009	0,08
	26. 8.60	9.50 - 10.50	73	16			0,009	0,12
	29. 8.60	10.15 - 11.15	47	25	0,2	0,9	0,009	0,07
	30. 8.60	10.10 - 11.10	21	17				
	31. 8.60	12.25 - 13.25	10	13				
	1. 9.60	8.11 - 9.11	41	34	0,1	1,1	$\leq 0,008$	0,11
	2. 9.60	10.10 - 11.10	6	9	$\leq 0,1$	0,5	$\leq 0,008$	0,07
	5. 9.60	10.15 - 11.15		24				
	6. 9.60	10.45 - 11.45	34	24				
	7. 9.60	13.05 - 14.05	38	46				
	8. 9.60	8.00 - 9.00						
	12. 9.60	14.00 - 15.00	35	56	$\leq 0,1$	0,3	0,015	0,13
	13. 9.60	9.15 - 10.15	96	112	0,8	6,2	$\leq 0,008$	0,06
	14. 9.60	10.40 - 11.40	85	79	$\leq 0,1$	1,6	$\leq 0,008$	0,16
	15. 9.60	10.15 - 11.15	146	126	0,9	2,9	$\leq 0,008$	0,19
	16. 9.60	12.30 - 13.30	101	102			$\leq 0,008$	0,05
	19. 9.60	10.10 - 11.10			0,3	2,5	$\leq 0,008$	0,06
	20. 9.60	10.10 - 11.10	48	40	0,8	1,0	0,009	0,04
	21. 9.60	10.15 - 11.15	31	31			$\leq 0,008$	0,12
	22. 9.60	8.05 - 9.05	37	36	0,8	$\leq 0,3$	$\leq 0,008$	0,12
	23. 9.60	10.15 - 11.15	53	51			$\leq 0,008$	0,13
	26. 9.60	10.00 - 11.00	57	39	0,5	$\leq 0,3$	$\leq 0,008$	0,26
	27. 9.60	10.00 - 11.00	144	114	2,8	2,4	0,010	0,04
	28. 9.60	10.15 - 11.15	121	63			$\leq 0,008$	0,10
	29. 9.60	8.00 - 9.00	199	180	2,4	1,8	$\leq 0,008$	0,20
	30. 9.60	10.00 - 11.00	133	102			$\leq 0,008$	0,11
	3.10.60	10.00 - 11.00	47	42	1,9	1,2	$\leq 0,008$	0,10
	4.10.60	10.10 - 11.10	83	76	3,2	2,2	$\leq 0,008$	0,10
	5.10.60	10.30 - 11.30	38	39			$\leq 0,008$	0,12
	6.10.60	8.00 - 9.00	232	208	2,8	5,7	$\leq 0,008$	0,25
	10.10.60	10.30 - 11.30	52	43	0,2	$\leq 0,3$	$\leq 0,008$	0,11
	11.10.60	9.30 - 10.30	42	28	$\leq 0,1$	0,6	0,010	0,09
	12.10.60	10.20 - 11.20	20	15			$\leq 0,008$	0,10
	13.10.60	8.10 - 9.10	50	44	$\leq 0,1$	$\leq 0,3$	$\leq 0,008$	0,16
	14.10.60	10.30 - 11.30	76	56			$\leq 0,008$	0,06
	17.10.60	8.10 - 9.10	32	47	0,2	1,6	0,010	0,05
	18.10.60	8.00 - 9.00	58	61	1,3	1,3	$\leq 0,008$	0,05
	19.10.60	9.00 - 10.00	97	102			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$



Tab.8 Fortsetzung

Probennahme			Rn = Reihe		Tn = Reihe		langleb. Anteile	
Ort	Datum	Zeit	$\alpha$	$\beta$	$\alpha$	$\beta$	$\alpha$	$\beta$
Kernforschungs- anlage	20.10.60	7.30 - 8.30	253	285	2,3	1,2	< 0,008	0,04
	21.10.60	7.30 - 8.30	181	163			0,009	< 0,04
	24.10.60	7.30 - 8.30	72	62	1,8	< 0,3	< 0,008	< 0,04
	25.10.60	7.30 - 8.30	125	47	0,8	1,6	< 0,008	0,05
	26.10.60	8.30 - 9.30	82	91			< 0,008	0,06
	27.10.60	7.40 - 8.40	50	48	0,4	1,6	0,014	< 0,04
	28.10.60	8.40 - 9.40	126	92			< 0,008	< 0,04
	31.10.60	8.30 - 9.30	30	38	< 0,1	2,1	0,015	0,48
	2.11.60	7.30 - 8.30	12	15			< 0,008	0,11
	3.11.60	7.30 - 8.30	30	43	0,6	< 0,3	< 0,008	0,42
	4.11.60	7.30 - 8.30	71	62			< 0,008	0,09
	7.11.60	8.40 - 9.40	24	17	0,4	< 0,3	0,009	< 0,04
	8.11.60	7.35 - 8.35	16	21	0,5	< 0,3	< 0,008	0,25
	9.11.60	7.35 - 8.35	182	158			< 0,008	0,24
	10.11.60	10.50 - 11.50	65	68	0,3	0,3	< 0,008	0,10
	11.11.60	7.30 - 8.30	24	26			< 0,008	0,26
	14.11.60	7.40 - 8.40	32	37	< 0,1	1,2	< 0,008	0,12
	15.11.60	7.30 - 8.30	56	63				
	17.11.60	7.40 - 8.40	45	53				
	18.11.60	7.40 - 8.40	10	13			< 0,008	< 0,04
	21.11.60	7.35 - 8.35	39	67	0,4	0,7	< 0,008	0,05
	22.11.60	7.30 - 8.30	81	76	1,4	0,6	< 0,008	< 0,04
	23.11.60	7.30 - 8.30	31	34				
	24.11.60	8.00 - 9.00	15	19	< 0,1	0,3	0,015	0,04
	25.11.60	7.30 - 8.30	22	18			< 0,008	< 0,04
	28.11.60	7.30 - 8.30	24	28	< 0,1	0,4	< 0,008	< 0,04
	29.11.60	7.35 - 8.35	15	30				
	30.11.60	7.30 - 8.30	22	27				
	1.12.60	7.30 - 8.30	53	70	0,8	0,4	< 0,008	< 0,04
	2.12.60	7.30 - 8.30	69	75			< 0,008	0,20
	5.12.60	14.50 - 15.50	21	22	0,2		< 0,008	
	6.12.60	7.40 - 8.40	27	29	0,1	0,7	< 0,008	< 0,04
	7.12.60	7.35 - 8.35	46	48			< 0,008	0,08
	8.12.60	8.00 - 9.00	65	66	0,3	< 0,3	< 0,008	0,11
	9.12.60	7.00 - 8.00	64	48			< 0,008	0,11
	12.12.60	8.35 - 9.35	71	78	0,9	3,6	< 0,008	< 0,04
	13.12.60	7.25 - 8.25	80	229	2,4	2,5	< 0,008	< 0,04
	14.12.60	7.25 - 8.25	33	61			< 0,008	< 0,04
	15.12.60	7.30 - 8.30	54	95	0,7	1,5	0,010	< 0,04
	16.12.60	7.45 - 8.45	73	154			< 0,008	< 0,04
	12.12.60	7.25 - 8.25	83	75	0,6	1,3	< 0,008	< 0,04
	20.12.60	7.25 - 8.25	165	168				
	21.12.60	7.20 - 8.20	88	85				
	22.12.60	7.15 - 8.15	13	16	0,2	< 0,3	< 0,008	< 0,04
	23.12.60	7.30 - 8.30	32	40			< 0,008	< 0,04
	27.12.60	8.20 - 9.20	29	39			< 0,008	< 0,04
	29.12.60	8.10 - 9.10	122	97	1,0	0,8	< 0,008	0,05
	30.12.60	8.55 - 9.55	21	26			< 0,008	< 0,04
Jülich - Süd Labor	4. 1.60	14.00 - 15.00	112	58			0,009	0,25
	6. 1.60	12.00 - 13.00	15	14			0,021	0,04
	8. 1.60	12.30 - 13.30	49	68			0,012	0,07
	11. 1.60	12.00 - 13.00	44	50			0,012	0,14
	13. 1.60	12.00 - 13.00	63	60			0,012	< 0,04
	15. 1.60	12.00 - 13.00	509	189			0,027	< 0,04
	18. 1.60	14.25 - 15.25	56	90			< 0,008	0,12
	20. 1.60	12.10 - 13.10	16	26			< 0,008	< 0,04

Tab.8 Fortsetzung

Probennahme			Rn - Reihe		Ra - Reihe		langleb. Anteile	
Ort	Datum	Zeit	$\alpha$	$\beta$	$\alpha$	$\beta$	$\alpha$	$\beta$
Jülich - Süd Labor	22. 1.60	12.00 - 13.00	70	66			$\leq 0,008$	0,11
	25. 1.60	12.00 - 13.00	32	58			$\leq 0,008$	0,08
	1. 2.60	14.00 - 15.00	97	99			$\leq 0,008$	0,04
	3. 2.60	12.00 - 13.00	37	75			$\leq 0,008$	0,18
	5. 2.60	12.00 - 13.00	82	89			$\leq 0,008$	0,13
	8. 2.60	12.00 - 13.00	46	55			$\leq 0,008$	0,18
	10. 2.60	12.00 - 13.00	136	147			0,012	0,28
	12. 2.60	12.00 - 13.00	245	168			$\leq 0,008$	0,06
	15. 2.60	14.30 - 15.30	22	32			$\leq 0,008$	0,11
	17. 2.60	12.00 - 13.00	29	34			0,009	0,04
	19. 2.60	12.00 - 13.00	38	41			0,012	0,18
	22. 2.60	12.00 - 13.00	175	171			$\leq 0,008$	0,09
	24. 2.60	12.00 - 13.00	17	23			$\leq 0,008$	0,14
	26. 2.60	12.00 - 13.00	115	98			$\leq 0,008$	0,06
	2. 3.60	12.00 - 13.00	26	51			$\leq 0,008$	0,11
	4. 3.60	12.00 - 13.00	13	22			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	7. 3.60	12.00 - 13.00	84	85			0,015	0,09
	9. 3.60	12.10 - 13.10	172	151			0,015	0,22
	11. 3.60	12.00 - 13.00	145	159			0,009	$\leq 0,04$
	14. 3.60	13.00 - 14.00	141	152			0,015	0,10
	16. 3.60	12.00 - 13.00	122	111			$\leq 0,008$	0,11
	18. 3.60	12.00 - 13.00	69	77			0,027	0,10
	21. 3.60	12.00 - 13.00	90	86			$\leq 0,008$	0,22
	23. 3.60	12.00 - 13.00	102	116			0,059	$\leq 0,04$
	25. 3.60	12.00 - 13.00	197	180			0,059	0,11
	28. 3.60	12.00 - 13.00	144	121			0,025	$\leq 0,04$
	30. 3.60	12.07 - 13.07	179	158			0,018	$\leq 0,04$
	1. 4.60	12.00 - 13.00	113	53			0,009	0,06
	4. 4.60	12.00 - 13.00	22	22			0,150	0,20
	6. 4.60	12.00 - 13.00	41	49			$\leq 0,008$	0,14
	8. 4.60	12.00 - 13.00	75	70			0,009	0,20
	11. 4.60	12.15 - 13.15	18	27			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	13. 4.60	12.20 - 13.20	46	42			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	20. 4.60	12.00 - 13.00	81	80			0,012	0,23
	22. 4.60	12.00 - 13.00	22	25			$\leq 0,008$	0,07
	25. 4.60	12.10 - 13.10	7	10			0,009	0,10
	27. 4.60	12.00 - 13.00	14	20			0,015	0,17
	29. 4.60	12.20 - 13.20	29	22			0,012	0,09
	2. 5.60	12.00 - 13.00	5	13			$\leq 0,008$	0,15
	4. 5.60	12.00 - 13.00	45	32			$\leq 0,008$	0,10
	6. 5.60	12.00 - 13.00	33	50			$\leq 0,008$	0,23
	9. 5.60	12.00 - 13.00	48	52			0,010	0,10
	11. 5.60	12.30 - 13.30	81	75			$\leq 0,008$	0,14
	13. 5.60	12.00 - 13.00	113	112			$\leq 0,008$	0,12
	16. 5.60	12.15 - 13.15	118	117			0,009	0,10
	18. 5.60	12.15 - 13.15	84	89			0,010	0,08
	20. 5.60	12.10 - 13.10	45	41			$\leq 0,008$	0,09
	23. 5.60	12.00 - 13.00	22	31			0,010	0,04
	25. 5.60	12.50 - 13.50	13	11			0,010	$\leq 0,04$
	27. 5.60	12.00 - 13.00	45	46				0,12
	7. 6.60	13.45 - 14.45	7	10			$\leq 0,008$	0,04
	10. 6.60	14.15 - 15.15	22	26			0,012	0,07
	15. 6.60	18.00 - 19.00	21	27			0,027	0,10
	27. 6.60	12.43 - 13.43	10	14				
	1. 7.60	8.00 - 9.00	26	21			$\leq 0,008$	0,09
	8. 7.60	8.25 - 9.25	211	210			$\leq 0,008$	0,07

Tab.8 Fortsetzung

Probennahme			Rn - Reihe		Tn - Reihe		langleb. Anteile	
Ort	Datum	Zeit	$\alpha$	$\beta$	$\alpha$	$\beta$	$\alpha$	$\beta$
Jülich - Süd Labor	18. 7.60	8.30 - 9.30	28	29				
	21. 7.60	14.45 - 15.45	24	26	0,8	0,6	0,009	0,08
	28. 7.60	14.35 - 15.35	120	102	1,1	0,6	0,009	0,13
	11. 8.60	14.31 - 15.31	133	137	0,7	< 0,3	< 0,008	0,94
	14. 8.60	14.22 - 15.22						
	18. 8.60	15.05 - 16.05	79	71			0,012	0,06
	25. 8.60	15.07 - 16.07	110	67	0,6	1,7	0,021	0,04
	1. 9.60	14.55 - 15.55	22	19	< 0,1	0,7	0,009	0,12
	8. 9.60	15.15 - 16.15	41	38			0,012	0,04
	22. 9.60	14.40 - 15.40	29	28			< 0,008	0,16
	29. 9.60	15.00 - 16.00	46	59			0,008	0,11
	6.10.60	14.40 - 15.40	77	63			< 0,008	0,11
	13.10.60	14.40 - 15.40	25	27			< 0,008	0,16
	20.10.60	8.40 - 9.40	335	131			< 0,008	0,11
	27.10.60	14.00 - 15.00	36	27				
	3.11.60	13.45 - 14.45	49	50			0,010	< 0,04
	10.11.60	10.40 - 11.40	67	64			0,010	
	17.11.60	8.45 - 9.45	48	50			0,008	0,30
	24.11.60	9.05 - 10.05	25	26				
	1.12.60	8.40 - 9.40	108	89			< 0,008	< 0,04
	8.12.60	7.50 - 8.50	81	81			< 0,008	0,73
	15.12.60	7.20 - 8.20	49	89			0,070	< 0,04
	22.12.60	7.25 - 8.25			0,1	0,3	0,008	< 0,04
	29.12.60	7.30 - 8.30	117	107			< 0,008	< 0,04
Wasserwerk - Jülich	3. 6.60	14.00 - 15.00	54	42			0,010	0,12
	10. 6.60	13.00 - 14.00	24	24			0,009	0,10
	15. 6.60	16.20 - 17.20	18	15			< 0,008	0,10
	27. 6.60	11.05 - 12.05	16	19				
	1. 7.60	15.00 - 16.00	13	9			0,009	0,05
	8. 7.60	13.55 - 14.55	32	34			< 0,008	0,12
	15. 7.60	14.40 - 15.40	30	27			0,012	0,12
	21. 7.60	12.00 - 13.00	18	20	0,2	< 0,3	0,009	0,07
	28. 7.60	13.10 - 14.10	91	97	0,5	0,6	0,012	0,12
	4. 8.60	8.15 - 9.15	109	82	0,4	0,6	0,009	0,23
	11. 8.60	8.10 - 9.10	221	220	1,0	< 0,3	< 0,008	0,61
	18. 8.60	13.05 - 14.05	162	114			< 0,008	0,11
	25. 8.60	13.25 - 14.25	87	84	0,5	1,1	0,018	0,06
	1. 9.60	13.40 - 14.40	28	26	0,8	0,7	0,059	0,08
	8. 9.60	13.45 - 14.45	43	37			< 0,008	0,07
	28. 9.60	13.10 - 14.10	29	33			0,010	0,21
	29. 9.60	13.25 - 14.25	118	118			< 0,008	0,16
	6.10.60	12.35 - 13.35	47	59			< 0,008	0,05
	13.10.60	13.00 - 14.00	30	36			< 0,008	0,15
	20.10.60	10.10 - 11.10	204	162			< 0,008	0,08
	27.10.60	12.20 - 13.20	31	32				
	3.11.60	12.10 - 13.10	37	46			< 0,008	0,37
	10.11.60	15.40 - 16.40	203				< 0,008	0,05
	17.11.60	10.30 - 11.30	72	62			< 0,008	< 0,04
	24.11.60	11.20 - 12.20	28	26			< 0,008	< 0,04
	1.12.60	13.50 - 14.50	96	97	0,8	< 0,3	< 0,008	0,05
	8.12.60	9.00 - 10.00	36	29	0,2	< 0,3	< 0,008	0,57
	15.12.60	14.40 - 15.40	118	80	1,5	2,2	0,013	0,04
	22.12.60	13.30 - 14.30	15	17				
Stettermich Jägersruh	29.12.60	9.30 - 10.30	117	93			< 0,008	< 0,04
	3. 6.60	12.00 - 13.00	56	61			0,009	0,25
	10. 6.60	11.00 - 12.00	25	28			0,009	0,11

Tab.8 Fortsetzung

Probennahme			Rn - Reihe		Tn - Reihe		langleb. Anteile	
Ort	Datum	Zeit	$\alpha$	$\beta$	$\alpha$	$\beta$	$\alpha$	$\beta$
Stetternich Jägersruh	15. 6.60	14.50 - 15.50	25	24			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	24. 6.60	15.55 - 16.55	13	130			0,009	0,10
	1. 7.60	11.40 - 12.40	7	107			0,012	$\leq 0,04$
	8. 7.60	12.50 - 13.50	67	61			$\leq 0,008$	0,13
	15. 7.60	13.30 - 14.30	48	49			0,009	0,12
	21. 7.60	10.50 - 11.50	23	24	0,3	$\leq 0,3$	$\leq 0,008$	0,08
	28. 7.60	11.50 - 12.50	95	87	0,1	0,1	0,009	0,11
	4. 8.60	9.25 - 10.25	90	77	0,1	0,4	0,015	0,10
	11. 8.60	9.16 - 10.16	193	178	1,6	0,3	0,009	0,93
	18. 8.60	11.45 - 12.45	312	198			0,009	0,08
	25. 8.60	12.00 - 13.00	96	72	0,5	0,5	0,018	0,07
	1. 9.60	12.32 - 13.32	53	36	0,6	$\leq 0,3$	0,050	0,09
	8. 9.60	12.01 - 13.01	29	39			0,009	0,19
	22. 9.60	12.00 - 13.00	23	28			$\leq 0,008$	0,17
	29. 9.60	12.00 - 13.00	129	112			$\leq 0,008$	0,19
	6.10.60	11.40 - 12.40	174	212			$\leq 0,008$	0,08
	13.10.60	11.50 - 12.50	27	31			$\leq 0,008$	0,16
	20.10.60	11.30 - 12.30	257	138			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	27.10.60	11.10 - 12.10	27	38			$\leq 0,008$	0,08
	3.11.60	11.00 - 12.00	52	54			0,028	0,12
	10.11.60	14.30 - 15.30	39	128			0,015	0,32
	17.11.60	16.05 - 17.05	48	78			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	24.11.60	12.30 - 13.30	25	25			0,008	$\leq 0,04$
	1.12.60	12.20 - 13.20	96	85			0,009	0,34
	8.12.60	12.40 - 13.40	66	64			0,018	$\leq 0,04$
	15.12.60	14.00 - 15.00	133	96			0,020	$\leq 0,04$
	22.12.60	11.15 - 12.15	10	13				
	29.12.60	10.45 - 11.45	116	83			0,008	$\leq 0,04$
Hambach Wasserwerk	3. 6.60	10.00 - 11.00	116	105			0,009	0,87
	10. 6.60	9.35 - 10.35	13	10			0,009	0,09
	15. 6.60	10.31 - 11.31	17	17			$\leq 0,008$	0,38
	24. 6.60	10.40 - 11.40	114	114			0,015	0,07
	1. 7.60	10.05 - 11.05	5	88			0,015	$\leq 0,04$
	8. 7.60	11.20 - 12.20	65	71			$\leq 0,008$	0,17
	15. 7.60	11.40 - 12.40	40	48			0,015	0,11
	21. 7.60	9.10 - 10.10	39	37	0,1	0,5	0,010	0,19
	28. 7.60	10.41 - 11.41	75	83	0,7	0,7	$\leq 0,008$	0,15
	4. 8.60	10.30 - 11.30	62	40	0,7	0,5	0,012	0,09
	11. 8.60	10.30 - 11.30	197	170			0,018	0,88
	18. 8.60	10.35 - 11.35	284	218			0,012	$\leq 0,04$
	25. 8.60	10.31 - 11.31	89	86	0,5	0,7	0,012	0,04
	1. 9.60	10.53 - 11.53	37	41	0,1	2,5	0,014	0,04
	8. 9.60	10.31 - 11.31	45	16			0,015	0,17
	22. 9.60	10.25 - 11.25	23	34			$\leq 0,008$	0,12
	29. 9.60	10.50 - 11.50	157	142			$\leq 0,008$	0,19
	6.10.60	10.15 - 11.15	116	119			$\leq 0,008$	0,28
	13.10.60	10.25 - 11.25	38	35			$\leq 0,008$	0,14
	20.10.60	12.40 - 13.40	176	182			$\leq 0,008$	0,06
	27.10.60	9.55 - 10.55	23	64			$\leq 0,008$	0,06
	3.11.60	9.45 - 10.45	49	48			0,051	0,09
	10.11.60	13.15 - 14.15	73	76			$\leq 0,008$	0,16
	17.11.60	14.40 - 15.40						
	24.11.60	13.50 - 14.50	19	20			$\leq 0,008$	0,32
	1.12.60	11.05 - 12.05	108	192			$\leq 0,008$	0,12
	8.12.60	11.20 - 12.20	92	79			$\leq 0,008$	0,07
	15.12.60	11.05 - 12.05	165	122			0,014	$\leq 0,04$

Tab.8 Fortsetzung

Probennahme			Rn - Reihe		Tn - Reihe		langleb. Anteile	
Ort	Datum	Zeit	$\alpha$	$\beta$	$\alpha$	$\beta$	$\alpha$	$\beta$
Hambach Wasserwerk Daubenrath	22.12.60	10.00 - 11.00	10	14				
	29.12.60	13.50 - 14.50	106	106			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	3. 6.60	8.40 - 9.40	197	115			$\leq 0,008$	0,89
	10. 6.60	8.20 - 9.20	24	24			$\leq 0,008$	0,11
	15. 6.60	8.45 - 9.45	25	7			0,009	0,05
	24. 6.60	9.20 - 10.20	93	88			$\leq 0,008$	0,15
	1. 7.60	8.50 - 9.50	5	27			0,012	$\leq 0,04$
	8. 7.60	9.40 - 10.40	160	154			$\leq 0,008$	0,10
	15. 7.60	10.35 - 11.35	68	42			0,021	0,12
	21. 7.60	8.05 - 9.05	62	63	0,3	1,8	0,009	0,11
	28. 7.60	9.38 - 10.38	57	66	1,4	$\leq 0,3$	0,009	0,23
	11. 8.60	11.35 - 12.35	115	149	0,1	$\leq 0,3$	0,009	0,64
	14. 8.60	11.47 - 12.47	44	56	0,3	$\leq 0,3$	$\leq 0,008$	0,50
	18. 8.60	9.30 - 10.30	217	216			0,021	0,22
	25. 8.60	9.27 - 10.27	99	75	0,5	0,7	0,021	$\leq 0,04$
	1. 9.60	9.50 - 10.50	42	56	0,1	4,3	$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	8. 9.60	9.50 - 10.50	83	69			0,009	0,16
	22. 9.60	9.30 - 10.30	27	40	0,7	$\leq 0,3$	$\leq 0,008$	0,31
	29. 9.60	9.45 - 10.45	124	277	1,4	1,5	0,010	0,18
	6.10.60	9.10 - 10.10	171	153	3,1	5,5	$\leq 0,008$	0,29
	13.10.60	9.20 - 10.20	41	30	0,7	1,2	$\leq 0,008$	0,10
	20.10.60	13.45 - 14.45	222	204	2,8	2,5	$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	27.10.60	8.50 - 9.50	41	126	0,3	2,7	$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	3.11.60	8.40 - 9.40	28	29			$\leq 0,008$	0,24
	10.11.60	12.10 - 13.10	52	92	0,3	$\leq 0,3$	0,028	0,28
	17.11.60	13.35 - 14.35	67	57	1,2	1,2	$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	24.11.60	15.00 - 16.00	19	14				
	1.12.60	10.00 - 11.00	123	101			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	8.12.60	10.15 - 11.15	121	119			$\leq 0,008$	0,06
	15.12.60	9.00 - 10.00	181	142			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	22.12.60	8.50 - 9.50	10	15			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	29.12.60	14.00 - 15.00	131	103			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
Bergheim	4. 1.60	10.00 - 11.00	238	315			0,012	$\leq 0,04$
	18. 1.60	10.30 - 11.30					$\leq 0,008$	0,20
	1. 2.60	9.45 - 10.45					$\leq 0,008$	0,08
	15. 2.60	10.00 - 11.00	85	54			0,009	0,22
	28. 3.60	9.40 - 10.40	158	104			0,082	$\leq 0,04$
	25. 4.60	11.30 - 12.30	138	60			$\leq 0,008$	0,15
Steinsträß	4. 1.60	11.15 - 12.15	66	192			$\leq 0,008$	$\leq 0,04$
	18. 1.60	11.50 - 12.50	13	52			0,009	0,12
	1. 2.60	11.15 - 12.15	124	131			$\leq 0,008$	0,05
	15. 2.60	11.25 - 12.25	46	260			0,018	0,10
	14. 3.60	10.30 - 11.30	29	106			$\leq 0,008$	0,09
	11. 4.60	9.45 - 10.45	59	23			0,009	0,10
	9. 5.60	9.45 - 10.45	107	133			0,009	0,10
Düren Fa. Schoeller	14. 1.60	11.15 - 12.15				1,2	0,021	0,18
	11. 2.60	10.15 - 11.15				4,2	0,021	0,04
	10. 3.60	10.30 - 11.30	97	182	3,2	1,5	0,036	0,22
	21. 4.60	11.30 - 12.30	29		0,9	0,8	$\leq 0,008$	0,10
	25. 5.60	9.45 - 10.45	44	129			$\leq 0,008$	0,12
Düren (Turaphot)	14. 1.60	12.30 - 13.30	56	53	1,5	1,4	0,009	0,15
	11. 2.60	11.45 - 12.45	82	332	0,3	$\leq 0,3$	0,009	0,30
	10. 3.60	12.10 - 13.10	414	230	2,0	1,0	0,027	$\leq 0,04$
	21. 4.60	13.05 - 14.05	17	19	1,4	1,8	0,009	0,22
	25. 5.60	11.30 - 12.30		48			0,012	0,11

2.124 Diskussion

Die für die Rn-Reihe angegebenen Resultate sind jeweils Mittelwerte der aus den Messungen nach 10 min und 1 h berechneten Aktivitäten. Diese unterscheiden sich im Mittel nur um den Faktor 1,04, woraus sich wiederum auf die Zulässigkeit der Vernachlässigungen bei der Berechnung der temperaturabhängigen Korrekturfaktoren schließen läßt.

Zur Weiteren Diskussion der Aerosolaktivitäten sind in Tab. 9 die Jahresmittelwerte der Aktivität der Rn-Reihe, der Tn-Reihe und des langlebigen Aktivitätsanteils über alle Meßstellen sowie einige Relationen zwischen diesen Größen angegeben. Bei allen Vorbehalten gegenüber der Mittelwertbildung, die sich über verschiedene Meßstellen, Jahreszeiten, Tageszeiten und Wetterlagen erstreckt, dürften die Jahreswerte doch als innerhalb der verhältnismäßig großen Fehlergrenzen repräsentativ anzusehen sein.

Tab. 9

Jahresmittel der Aerosolaktivität

	$\alpha$ -Aktivität	$\beta$ -Aktivität	$\frac{\alpha\text{-Aktivität}}{\beta\text{-Aktivität}}$
$A^{Rn} = \text{Akt. d. Rn-Reihe}$	67 $\text{pc/m}^3$	68 $\text{pc/m}^3$	0,99
$A^{Tn} = \text{Akt. d. Tn-Reihe}$	0,8 $\text{pc/m}^3$	1,2 $\text{pc/m}^3$	0,67
$A = \text{Akt. d. langleb. Anteils}$	0,01 $\text{pc/m}^3$	0,13 $\text{pc/m}^3$	0,08
$\frac{A^{Tn}}{A^{Rn}} = \frac{\text{Akt. d. Tn-Reihe}}{\text{Akt. d. Rn-Reihe}}$	0,012	0,02	
$\frac{A}{A^{Rn}} = \frac{\text{Akt. d. langleb. Anteils}}{\text{Akt. d. Rn-Reihe}}$	0,00015	0,002	
$\frac{A}{A^{Tn}} = \frac{\text{Akt. d. langleb. Anteils}}{\text{Akt. d. Tn-Reihe}}$	0,013	0,11	

Die Aktivitätsanteile standen im vergangenen Jahr größenordnungsmäßig in folgenden Verhältnissen:

$$\alpha\text{-Aktivität: } A_{\alpha}^{\text{Rn}} : A_{\alpha}^{\text{Tn}} : A_{\alpha} = 10\,000 : 100 : 1$$

$$\beta\text{-Aktivität: } A_{\beta}^{\text{Rn}} : A_{\beta}^{\text{Tn}} : A_{\beta} = 10\,000 : 100 : 10$$

Der Anteil der langlebigen Aktivität an der Gesamtaktivität war demnach bei der  $\alpha$ -Strahlung um eine Zehnerpotenz kleiner als bei der  $\beta$ -Strahlung. Da sich der langlebige Anteil aus Spaltprodukten des Fallout und aus den langlebigen natürlichen Folgeprodukten der Rn-Reihe ( $\alpha$ -Strahler: RaF;  $\beta$ -Strahler: RaD, RaE) zusammensetzt, der künstliche Fallout jedoch praktisch keine  $\alpha$ -Strahler enthält, läßt sich schließen, daß die gesamte langlebige  $\alpha$ -Strahlung ( $0,01 \text{ pc/m}^3$ ) und entsprechend  $0,02 \text{ pc/m}^3$ , d.h. rund 15% der langlebigen  $\beta$ -Strahlung, auf RaD und seine Folgeprodukte zurückgehen. (Die Aktivität von ThB und Folgeprodukten ist z.Zt. der Messung des langlebigen Anteils nach 4 Tagen (10 Halbwertszeiten von ThB) bereits auf 1 % abgeklungen, das sind im Mittel 8 % der langlebigen  $\alpha$ -Aktivität oder 1 % der langlebigen  $\beta$ -Aktivität).

Wie aus Tab. 9 hervorgeht, ist das Aktivitätsverhältnis

$$\frac{\text{Aktivität des langlebigen Anteils}}{\text{Aktivität der Rn-Reihe}} = 1,5 \cdot 10^{-4},$$

wobei in der langlebigen Aktivität neben dem RaF nach obiger Abschätzung noch 8 % langlebige Tn-Folgeprodukte enthalten sind, während sich die Aktivität der Rn-Reihe bei radioaktivem Gleichgewicht aus gleichen Aktivitätsanteilen Rn, RaA und RaC zusammensetzt. Für den Anreicherungsgrad der langlebigen Rn-Folgeprodukte ergibt sich daraus

$$\frac{A_{\text{RaF}}}{A_{\text{Rn}}} = 3 \cdot (1,5 - 0,1) \cdot 10^{-4} = 4,2 \cdot 10^{-4},$$

d.h. die langlebigen Rn-Folgeprodukte RaD, RaE und RaF setzen sich auch nicht annähernd mit dem Rn ins Gleichgewicht, da durch die Selbstreini-

gungsvorgänge der Troposphäre das nachgebildete RaD immer wieder ausgewaschen wird. Mit dem oben angegebenen Anreicherungsgrad läßt sich die mittlere Verweildauer der Aerosole in der bodennahen Atmosphäre abschätzen.

Dabei werden die kurzlebigen und die langlebigen Anteile der Rn-Reihe als 2 Gruppen mit den Halbwertszeiten  $T_1$  und  $T_2$  behandelt ( $T_1 \ll T_2 = 19,4 \text{ a}$ ). Die Rn-Aktivität  $A_1 = \lambda_1 N_1$  soll als konstant angenommen werden. Es ergeben sich dann die Differentialgleichungen

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{dt} &= 0 \\ \frac{dN_2}{dt} &= \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 - \lambda N_2 \end{aligned} \quad (21)$$

mit  $\lambda_1, \lambda_2$  = Zerfallskonstanten

$\lambda$  = Selbstreinigungskonstante der Troposphäre ,

die mit der Randbedingung  $N_2(0) = 0$  die Lösung

$$N_2 = \frac{\lambda_1 N_1}{\lambda_2 + \lambda} (1 - e^{-(\lambda_2 + \lambda)t}) \quad (22)$$

ergeben. Wegen  $\lambda \gg \lambda_2$  folgt daraus

$$\frac{A_2}{A_1} = \frac{\lambda_2 N_2}{\lambda_1 N_1} = \frac{\lambda_2}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (23)$$

oder für große  $t$

$$\frac{A_2}{A_1} = \frac{\lambda_2}{\lambda} = \frac{T}{T_2} \quad (24)$$

$T$  = Halbwertszeit der Selbstreinigungsvorgänge.

Mit dem oben angegebenen Aktivitätsverhältnis  $4,2 \cdot 10^{-4}$  berechnet sich aus der "Halbwertszeit"  $T$  die mittlere Verweilzeit der Aerosole in der bodennahen Troposphäre bei den im Jülicher Raum vorherrschenden meteorologischen Verhältnissen im Jahresmittel zu  $\frac{T}{\ln 2} = 4,3 \text{ d}$ .



Bei den mit dem elektrostatischen Filtergerät gesammelten Luftstaubproben sind die Ergebnisse des langlebigen Aktivitätsanteils im allgemeinen als repräsentativ für den Probennahmetag anzusehen. Dagegen stellen die Einzelergebnisse der Aktivität der Rn-Reihe und der Tn-Reihe wegen des ausgeprägten Tagesganges der natürlichen Aerosolaktivität (vgl. Abb. 11) nicht ohne weiteres den Tagesmittelwert dar. (Eine Vereinheitlichung der Probennahmezeit ist aus technischen Gründen nicht möglich.) Da die kurzlebige Aktivität im Verlauf von 24 h im Mittel etwa um den Faktor 3 - 4 schwankt und bei Strahlungswetterlagen in Extremfällen sogar Unterschiede um fast zwei Größenordnungen beobachtet werden, muß man mit der Möglichkeit ziemlich starker Abweichungen der Stichproben vom Tagesmittelwert rechnen.

Die Mittelwerte sind dagegen als einigermaßen zuverlässig anzusehen, da sich die Mittelung über alle Probennahmezeiten von 8-17 Uhr erstreckt. Um das Langzeitverhalten möglichst gut beurteilen zu können, sind in die Darstellung auch unsere Ergebnisse von 1959 mit aufgenommen worden. Wie zu erwarten, erweist sich die natürliche Radioaktivität als innerhalb der statistischen Schwankungen konstant, während sich bei der künstlichen Radioaktivität nach der Einstellung der Atombombenversuche der an anderer Stelle (2.133) ausführlicher diskutierte Aktivitätsabfall zeigt. Die Sahara-Versuche vom 13.2. und 1.4.1960 haben jeweils nur zu einer kurzfristigen Aktivitätserhöhung (vgl. Anstieg der langlebigen Aerosolaktivität am 29. 2.60 in Abb. 11) geführt.

Vergleicht man in Tab. 9 die nach derselben Methode (elektrostatische Abscheidung) gemessenen  $\alpha$ - und  $\beta$ -Aktivitäten der Aerosole, die nach dem Aufbau der natürlichen Zerfallsreihen der Rn- und Tn-Emanationen im Verhältnis 3 : 2 stehen sollten, so ergibt sich, daß die  $\alpha$ -Aktivität relativ zur  $\beta$ -Aktivität zu niedrig ausfällt, und zwar stehen die Meßwerte etwa im Verhältnis  $\alpha : \beta = 1 : 1$ .

Die hauptsächliche Fehlerquelle dürfte in der unzutreffenden Annahme radioaktiven Gleichgewichts liegen. Da unter den  $\alpha$ -Strahlern der Rn-Reihe Rn, RaA und RaC' praktisch nur das langlebige RaC' gemessen wird, während die langlebigen  $\beta$ -Strahler RaB und RaC beide nachgewiesen werden, führt eine Bestimmung der  $\beta$ -Aktivität aus den Meßwerten mit Hilfe der Korrekturfaktoren auch dann zu brauchbaren Ergebnissen, die den wahren Wert der  $\beta$ -Aktivität im Luftraum wiedergeben, wenn kein Gleichgewicht vorliegt,

d.h. der Anreicherungsgrad für RaB, RaC, RaC' bezogen auf Rn und RaA kleiner als 1 ist. Dagegen fällt die berechnete  $\alpha$ -Aktivität im letzteren Fall zu klein aus.

Da der  $\beta$ -Wert als weitgehend unabhängig von der Berechnung des Gleichgewichts angesehen werden kann, gibt die Abweichung der  $\alpha$ -Aktivität vom Gleichgewichts-Sollwert ein Maß für die Störung des Gleichgewichts (selbstverständlich ergibt sich auch bei einem unmittelbaren Vergleich der unkorrigierten Nettozählraten des Staubpräparates eine entsprechende Reduzierung des von LINDEKEN (15) theoretisch abgeleiteten zeitabhängigen  $\alpha/\beta$ -Aktivitätsverhältnisses auf dem Filter).

In die gleiche Richtung (zu große  $\beta$ -Ergebnisse) wirkt sich die Vernachlässigung des  $\alpha$ -Plateauanstiegs für das Methandurchflußzählrohr aus, der etwa 6 %/100 V beträgt. Da der Abstand zwischen den Betriebsspannungen für die  $\alpha$ - und  $\beta$ -Messung etwa 800 V beträgt, müßte zur Ermittlung der  $\beta$ -Zahlrate  $n_\beta$  streng genommen also ein um etwa 50 % höherer Wert als  $n_\alpha$  von  $n_{\alpha+\beta}$  abgezogen werden, d.h. statt

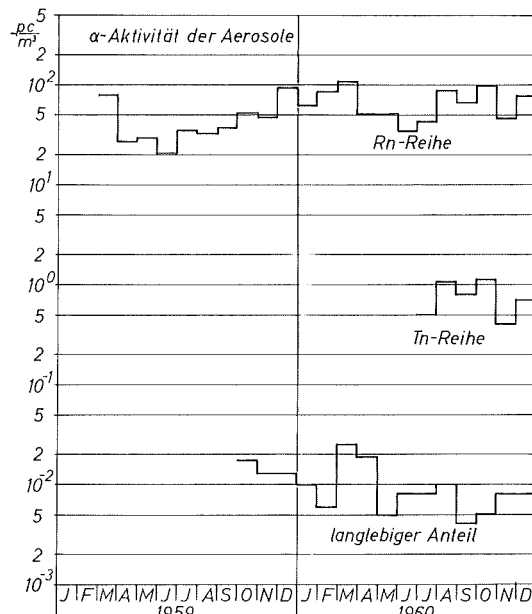
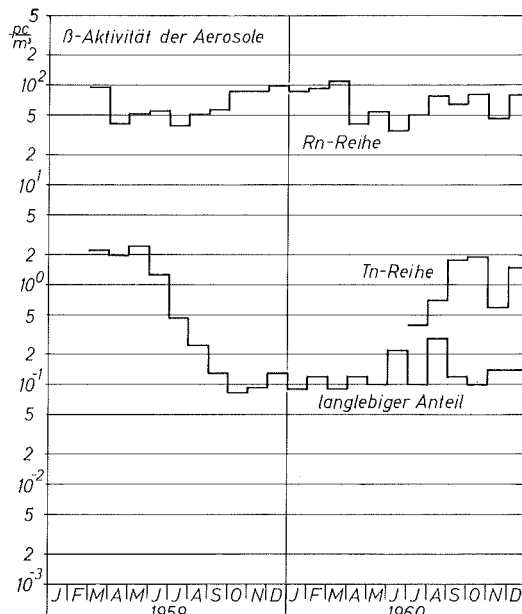
$$n_\beta (4\text{kV}) = n_{\alpha+\beta} (4\text{kV}) - n_\alpha (3,2\text{kV}) \quad \text{wäre genauer}$$

$$n_\beta (4\text{kV}) = n_{\alpha+\beta} (4\text{kV}) - 1,5 n_\alpha (3,2\text{kV}) \quad \text{zu schreiben.}$$

Bei Einsetzen charakteristischer Impulsraten für die Rn-Reihe ergibt sich, daß die berechneten  $\beta$ -Aktivitäten bei Berücksichtigung des  $\alpha$ -Plateauanstiegs um etwa 20 % zu reduzieren wären.

Schließlich ergibt sich noch dadurch ein Fehler, daß die in den Formeln (7), (8) eingesetzten  $(\alpha+\beta)$ - und  $\alpha$ -Impulsraten naturgemäß nicht gleichzeitig gemessen werden können. Zur Kleinhaltung des statistischen Zählfehlers ist vielmehr ein gewisser Zeitaufwand nötig, der gegenüber der Halbwertszeit der Filterprobe nicht zu vernachlässigen ist, so daß das Ergebnis verfälscht wird, weil sich die zum Einsetzen von  $K_\beta(t)$  benötigte Zeit nicht exakt definieren läßt.

Um einen Überblick über das Langzeitverhalten der Luftaktivität zu gewinnen, sind in den Abb. 6 und 7 die Monatsmittelwerte der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Akti-

Abb.6. Monatsmittel der  $\alpha$ -Aktivität der Aerosole 1959/60Abb.7. Monatsmittel der  $\beta$ -Aktivität der Aerosole 1959/60

vität seit Beginn unserer Aerosolmessungen, spezifiziert nach den verschiedenen Aktivitätsanteilen, zusammengestellt worden. Wichtigstes Ergebnis ist dabei die in 2.134 näher diskutierte Abnahme der langlebigen  $\beta$ -Aktivität im Sommer 1959, d.h. in dem auf die Einstellung der Atombombenversuche folgenden Jahr auf etwa  $1/20$  des früheren Wertes. Die langlebige  $\beta$ -Aktivität liegt aber immer noch um mindestens den Faktor 10 über der langlebigen  $\alpha$ -Aktivität, woraus geschlossen werden kann, daß die  $\beta$ -Strahlung auch heute noch zu ca. 90 % künstlichen Ursprungs ist.

Die französischen Kernwaffenversuche in der Sahara vom 13. 2. und 1. 4. 60 sind von uns registriert worden (s.o.), haben aber keinen merklichen Einfluß auf die Monatsmittelwerte gehabt. Die natürliche Aktivität ist als im Mittel konstant anzusehen. Jahreszeitliche Schwankungen, insbesondere eine Abnahme der Aktivitätskonzentration in der kalten Jahreszeit etwa durch eine Verminderung der Exhalation von Rn und Tn aus dem Boden sind nicht festzustellen gewesen.

Bei den mit dem Filterband kontinuierlich gemessenen Aerosolaktivitäten zeigt der kurzlebige Anteil einen deutlichen Tagesgang, der in Korrelation

zu den meteorologischen Bedingungen steht und unter 2.114 näher diskutiert wird.

Hinsichtlich der  $\beta$ -Aktivitäten der Aerosole ist ein Vergleich zwischen den Ergebnissen des elektrostatischen und des mechanischen Filterverfahrens möglich. Dabei ergibt sich, daß die nach dem elektrostatischen Verfahren gemessenen natürlichen  $\beta$ -Aktivitäten der Aerosole im Mittel um den Faktor 1,2 höher liegen als die zur selben Zeit nach der Filtermethode ermittelten Werte.<sup>(1)</sup> Die statistische Schwankung dieses Faktors ist allerdings beträchtlich. Die verhältnismäßig große Streuung ist aber im wesentlichen nicht durch Unsicherheiten des Meßverfahrens (Probennahme, Messung der Impulsrate) gegeben, sondern geht vielmehr auf die ungesicherten Voraussetzungen bei der Auswertung zurück.

Die Korrekturfaktoren für das elektrostatische Verfahren, die das zeitliche Abklingen der Aktivität während des Sammelns und während der Wartezeit bis zur Messung berücksichtigen, sind unter der Annahme radioaktiven Gleichgewichtes bestimmt worden. Diese Voraussetzung ist aber auch bei einer Ansaughöhe von 10 m über dem Erdboden für die langlebigen Rn-Folgeprodukte RaB, RaC, RaC' und RaC'' nur bei Wetterlagen mit geringem Vertikalaustausch annähernd erfüllt. Bei größerer Vertikalverfrachtung kann nach theoretischen Überlegungen von SCHMIDT (16) und PRIEB SCH (17) über die Höhenverteilung von Rn und Tn nur mit einem Anreicherungsgrad von grob 30 % gerechnet werden. Insgesamt sind hieraus Fehler bis etwa zu einem Faktor 2 zu erwarten. Demgegenüber sind andere systematische Fehler sowie der statistische Fehler zu vernachlässigen.

Die Unsicherheit der Faserfiltermethode ist durch das unbekannte Rn/ Tn-Verhältnis gegeben. Gelegentlich durchgeführte Abklinganalysen haben unter Voraussetzung radioaktiven Gleichgewichts zwar ergeben, daß die Aktivität der Rn-Reihe in der bodennahen Luft im Mittel um das 50-fache größer ist als die Aktivität der Tn-Reihe (vgl. (18), (19)). Diese Resultate hängen aber von der Höhe über dem Boden sowie von meteorologischen Bedingungen ab.

---

<sup>(1)</sup> Diese Diskrepanz ließe sich dadurch erklären, daß infolge des aus dem Plateauanstieg resultierenden Fehlers die  $\beta$ -Aktivität nach dem elektrostatischen Verfahren um 20 % zu groß ausfällt (s.o.). Die mit dieser Deutung erzielte völlige Übereinstimmung der Ergebnisse beider Methoden muß aber bei der Größe der übrigen von uns diskutierten Fehler als zufällig angesehen werden.

und sind daher nicht immer gültig (z.B. nimmt bei Bodenfrost die Tn-Exhalation des Bodens viel stärker ab als die Exhalation des langlebigeren Rn). Versuche, die Höhenabhängigkeit der einzelnen Komponenten der Luftaktivität zu messen, haben wegen der Vielzahl der Parameter (Vertikalaustausch in der Atmosphäre, der in Abhängigkeit von verschiedenen meteorologischen Faktoren des Witterungsablaufes steht; Exhalation, die durch die veränderlichen Temperaturverhältnisse im Boden und die Variabilität des Bodenzustandes infolge der Witterungseinflüsse gesteuert wird) bisher nicht zu eindeutigen Ergebnissen geführt. Quantitative Aussagen über die Höhe des Fehlers lassen sich nicht machen. Eine Erhöhung des Tn-Anteiles würde jedenfalls zur Berechnung zu hoher Luftaktivität führen. Schon bei einer Erhöhung des prozentualen Tn-Anteils von 2 % auf 4 % würde sich nach Abb. 5 und Formel (19) eine um 40 % zu große Aktivität der Tn-Reihe errechnen.

Die in den Monaten Januar bis Juli (außer März) festzustellende Parallelität im Verlauf der nach 3 h gemessenen "kurzlebigen" und der nach 2 Tagen gemessenen "langlebigen" Filterbandaktivität ist durch Vorhandensein von ThB zu erklären, das einerseits nach dem oben Gesagten bei der Messung nach 3 h einen großen Bruchteil der auf dem Filter vorhandenen Aktivität ausmacht und andererseits nach 2 Tagen noch nicht genügend abgeklungen ist, um gegenüber der seit 1959 ständig kleiner werdenden künstlichen Aktivität vernachlässigbar zu sein. Diese schon in unserem letzten Jahresbericht angeführte Deutung wurde bestätigt durch Verlängerung der Verzögerungszeit im März und ab August 1960 auf 4 Tage, wonach zwischen den beiden Kurven keine Korrelationen mehr vorhanden sind, weil die ThB-Aktivität nach dieser Zeit auf 1 <sup>0</sup>/100 abgeklungen ist und die künstliche Aktivität selbstverständlich keinen Tagesgang aufweist. Dieselben Resultate zeigte auch ein gemeinsam mit dem Deutschen Wetterdienst Aachen (Prof. ISRAEL) durchgeführter Meßgerätevergleich zwischen den Filterbandanlagen von Friesseke u. Hoepfner bzw. Landes u. Gyr (20), (21).

Der Einfluß des ThB-Anteils war in anderer Hinsicht schon 1959 sichtbar geworden, als wir die Ansaughöhe der Filterluft höher gelegt hatten. Die nach 3 h gemessene Impulsrate war seinerzeit merklich zurückgegangen, woraus im Einklang mit der Tatsache, daß die Tn-Aktivität mit der Höhe schnell abnimmt (9) (vgl. Tab.4), der Schluß zu ziehen war, daß die ThB-Aktivität nach 3 h Wartezeit für die Aktivitätsberechnung bereits eine be-

deutsame Rolle spielt.

Der statistische Zählfehler für die nach dem elektrostatischen Verfahren gemessenen Aerosolaktivität berechnet sich nach der Formel

$$\delta n = \frac{\sqrt{\frac{n_1}{t_1} + \frac{n_0}{t_0}}}{n_1 - n_0} \quad (25)$$

mit  $n_1$  = Bruttozählrate

$t_1$  = Bruttomeßzeit

$n_0$  = Nullrate

$t_0$  = Meßzeit des Nulleffektes

bzw. für  $t_1 = t_0 = t$  nach der vereinfachten Beziehung

$$\delta n = \frac{\sqrt{n + 2 \frac{n}{t}}}{n} \quad (26)$$

mit  $n = n_1 - n_0$  = Nettozählrate

Für die bei unseren Messungen vorliegenden Verhältnisse (Zählrate, Meßzeit) ergeben sich folgende mittlere Relativfehler: Die  $\alpha$ - und  $\beta$ -Aktivitäten der Rn-Reihe werden mit einem statistischen Fehler von 3 - 5 % bestimmt, der gegenüber dem aus der Unkenntnis des Tn-Anteils resultierenden systematischen Fehler vernachlässigbar ist. Der bei der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Aktivitätsbestimmung der Tn-Reihe auftretende Fehler beträgt im allgemeinen 20 - 25 %, die  $\alpha$ - und  $\beta$ -Aktivität des langlebigen Anteils liegt häufig unterhalb der Meßgrenze, die durch einen Fehler von ca. 75 % definiert wird. Die Meßergebnisse werden in solchen Fällen in der Form "Aktivität < x" (x=Zahlenwert für die Meßgrenze) angegeben. Erhebliche statistische Fehler ergeben sich auch nach Beziehung (2) für die kontinuierliche Aerosolmessung nach dem Filterbandverfahren besonders für die schwache langlebige Komponente.

Eine Herabsetzung der Fehler durch Verlängerung der Meßzeit ist im Routinebetrieb aus Zeitmangel nicht möglich. Wegen der Größe des systematischen Fehlers halten wir den dazu erforderlichen Aufwand auch nicht für sinnvoll.

Zusammenfassend läßt sich aus der bisherigen Fehlerdiskussion folgern, daß eine Bestimmung des Luftaktivitätswertes mit einer Genauigkeit bis auf den Faktor 2 praktisch das Optimum für Routinemessungen sein dürfte.

Für eine Absolutmessung der Aerosolaktivität muß das elektrostatische Filterverfahren, verglichen mit der Filterbandmethode in der von uns verwendeten Form, als geeigneter angesehen werden. Da die Methode der elektrostatischen Abscheidung aber nur Stichprobenmessungen zuläßt und zumindest für die natürliche Radioaktivität, wie die Abb. 11 und 16 zeigen, ein ausgeprägter Tagesgang vorliegt, behält die kontinuierliche Überwachung mit dem Bandfiltergerät trotzdem ihre Bedeutung. Sie kann, da sie Absolutmessungen nur mit Einschränkung zuläßt, in speziellen Fällen an nach dem elektrostatischen Verfahren ermittelte Eichwerte angeschlossen werden. Ein weiterer Vorteil der elektrostatischen Abscheidung bei den von uns verwendeten Geräten ist die geringere Verzögerung der Messung. Wenn eine genügend hohe Aktivität vorliegt (und dem Gleichgewicht auf dem Filter keine zu große Bedeutung beigemessen wird), können bei 5 - 10 Min. Sammelzeit Aerosolaktivitäten innerhalb 15 Minuten ermittelt werden, während die Verzögerungszeit des kontinuierlich messenden Gerätes in der Größenordnung von Stunden liegt. Selbstverständlich macht ein abgewandelter Versuchsaufbau, z.B. eine Anordnung des Detektors direkt über der Staubsammelstelle auch eine schnelle Messung mit Faserfiltern möglich.

Ein Vergleich mit den Meßwerten fremder Stationen muß wegen räumlicher und methodischer Unterschiede problematisch bleiben. Die vom Deutschen Wetterdienst Aachen 2 Tage nach Sammlung gemessenen langlebigen Aktivitäten liegen erwartungsgemäß höher als unsere nach dem elektrostatischen Verfahren bei 4 Tagen Wartezeit gewonnenen Resultate, da nach 2 Tagen die natürliche Aktivität von ThB noch nicht genügend abgeklungen ist und einen zu großen Wert der langlebigen Aktivität vortäuscht, wie auch unsere kontinuierlichen Messungen mit 2 Tagen Verzögerungszeit zeigen (s.u.). Größenordnungsmäßig stimmen unsere Meßwerte mit den Ergebnissen vergleichbarer Meßstellen dagegen in jedem Fall überein.

## 2.13 Aktivität des Gesamtniederschlages

### 2.131 Grundlagen

Unter 2.121 wurde beschrieben, daß im Luftraum Aktivitäten natürlichen

und künstlichen Ursprungs vorliegen, teils gasförmig, teils an Aerosole adsorbiert. Durch Sedimentation und vor allem durch Niederschläge (Regen, Schnee) wird der Erdoberfläche fortwährend radioaktiver Fallout zugeführt.

Die Aerosole können dabei entweder in höheren Luftschichten als Kondensationskerne für Niederschläge dienen ("Rain-out") oder durch den Regen auf seinem Weg zur Erdoberfläche mitgerissen werden ("Wash-out"). Auch Edelgase (Rn, Tn) können zu einem gewissen Grade im Niederschlag gelöst sein.

Der größere Teil der Niederschlagsaktivität ist natürlicher Herkunft und für die Umgebungsüberwachung von geringem Interesse, obwohl auch die Rn-Folgeprodukte eine meßbare Anreicherung des langlebigen RaD auf dem Erdboden ergeben.

Dagegen kann der radioaktive Fallout aus kerntechnischen Versuchen zu einer gefährlichen Akkumulierung langlebiger Nuklide auf der Erdoberfläche führen. Einen Überblick über Modellvorstellungen des Falloutmechanismus gibt MARTELL (22).

Kurzlebige Nuklide künstlichen Ursprungs waren im Jahre 1960 nur nach den französischen Atombombenversuchen in der Sahara zu erwarten. Der langlebige kerntechnische Fallout stammt ebenfalls (mit Ausnahme der auf die Saharaexperimente folgenden Wochen) aus dem langsam sich erschöpfenden stratosphärischen Reservoir, da die in die Troposphäre gelangten Spaltprodukte der früheren Versuchsserien inzwischen längst durch Selbstreinigungsvorgänge ausgefallen sind. Infolgedessen ist im Augenblick nur mit kleineren Schwankungen der Falloutaktivität entsprechend den veränderlichen Umlagerungs- und Austauschbedingungen in der Atmosphäre zu rechnen. Trotzdem genügt es nicht, wie unter 2.31 die integrale Bodenkontamination zu messen, sondern es muß besonders in Hinsicht auf größere unbeabsichtigte Emissionen durch kürzere Meßintervalle der Nachweis auch kurzlebiger Nuklide, die beim Betrieb von Kernforschungsanlagen freigesetzt werden könnten, ermöglicht werden. Die im folgenden beschriebene Meßmethode für die Gesamtniederschlagsaktivität (ausfallender Staub und Regen) erfaßt die zeitliche Verteilung der dem Boden zugeführten Aktivität.



2.132 Methodik

Für die Probennahme von Fallout sind 2 Verfahren gebräuchlich: Sammlung des ausfallenden Luftstaubes durch Auslegen von Haftfolien oder Erfassung von Staub und Niederschlägen zusammen durch Aufstellen von Sammelgefäßen.

Für Haftfolien verwendet man im allgemeinen eine Unterlage, die sich ohne größeren Rückstand veraschen läßt. Haftfolien können z.B. durch Bestreichen von Pergamentpapier mit Vaseline hergestellt werden. Gelegentlich findet auch einfaches Filterpapier ohne Haftschrift Verwendung. Zur autoradiographischen Untersuchung von Fallout auf heiße Teilchen eignen sich auch Haftfolien aus Metall. Zur Steigerung der Nachweisempfindlichkeit empfiehlt es sich, große Flächen zu verwenden. Es ergeben sich damit günstigere Randbedingungen bei der Probennahme und bessere statistische Grundlagen für die Auszählung heißer Teilchen. Die Expositionszeit der Haftfolien beträgt normalerweise eine Woche. Ein Nachteil der Falloutüberwachung mit Haftfolien ist jedoch die starke Witterungsabhängigkeit. Während sich in Trockenperioden brauchbare Ergebnisse erzielen lassen, besteht bei Regen die Gefahr, daß ein unkontrollierbarer Anteil des akkumulierten Staubes von der Haftfolie heruntergespült wird. Bei Verwendung von Filterpapier kann es zur Auflösung der Folie kommen. Bei Wind und Trockenheit ist für die Haftfolie unter Umständen ein stärkerer Sammelwirkungsgrad als für die Umgebung zu erwarten.

Um diese Nachteile der Haftfolie möglichst zu vermeiden, verwenden wir trichterförmige Auffanggefäße (sog. Hibernia-Trichter), durch die sowohl Staub als auch Niederschlag in Polyäthylenflaschen gesammelt werden. Die Form der oben konisch eingezogenen Hibernia-Trichter (Sammelquerschnitt  $500 \text{ cm}^2$ ) soll ein Herauswirbeln einmal hineingelangten Staubes durch den Wind verhindern. Allerdings ist auch dieses Probennahmeverfahren nicht fehlerfrei. Ganz allgemein hängt der Sammelwirkungsgrad, der die Retention des Sammlers bezogen auf den Rückhaltegrad der Umgebung angibt, von der Oberflächenbeschaffenheit beispielsweise der Vegetation der Umgebung ab. Dies gilt besonders für die Vegetationsfilterung von Staub. Der Sammelwirkungsgrad kann ferner von der Neigung der Trichteröffnung gegen die Wind- bzw. Niederschlagsrichtung beeinflusst werden. Besonders aber können Verwirbelungen am Trichterrand die Probennahme verfälschen (s.u.).

Neben unserem Routinesammelverfahren mit Hibernia-Trichtern wurden versuchsweise auch andere Sammelgefäße verwendet. Dabei ergaben sich große systematische Unterschiede in der gemessenen Niederschlagsaktivität. Mehrere Monate lang wurde eine mit Wasser gefüllte Schale (Rückhaltegrad 100 %) als Sammler eingesetzt. Im Durchschnitt von 30 Wochen lag die Aktivitätsausbeute um den Faktor 1,7 höher als bei den Hibernia-Trichter-Bo-  
ben, d.h. mit der Wasseroberfläche verglichen hatte der Hibernia-Trichter einen Rückhaltegrad von 60 %. Um die Verluste beim Ausspülen von Trichter und Polyäthylen-Flasche abzuschätzen, wurden über längere Zeit Porzellan-schalen exponiert, die mit einer Abziehlackfolie ausgekleidet waren. Die Niederschläge wurden vorsichtig auf dem Sandbad eingedampft und der Rückstand ohne Verluste mit der Abziehlackfolie aus der Sammelschale herausgelöst und nach Veraschen in die Meßschale überführt. Trotzdem wurden nur etwa 50% der mit Hibernia-Trichtern gesammelten Niederschlagsaktivität ge-  
messen. Die Vermutung, daß die niedrigen Flächenaktivitäten durch Herauswirbeln von Staub aus den flachen Schalen zu erklären seien, bestätigte sich nicht, da die Erweiterung zu einem Haftfolienverfahren durch Be-  
streichen der Abziehlackfolie mit Vaseline keine wesentliche Verbesserung der Ausbeute ergab. Für die unterschiedliche Wirksamkeit der Hibernia-Trichter und der flachen Schalen mag in erster Linie die auch von anderen Autoren festgestellte Abhängigkeit der Ausbeute von der Gefäßform verant-  
wortlich sein, die ihre Erklärung in Wirbelbildung an den verschieden geformten Sammlern finden dürfte.

Als Falloutsammler mit idealen Randbedingungen wäre eine mit Wasser ge-  
füllte Schale anzusehen, die zum Ausgleich von Spritzverlusten in einem Wasserbassin gleicher Füllhöhe aufgestellt werden müßte. Die für die Be-  
rechnung der spezifischen Aktivität (pc/l) benötigte Niederschlagsmenge müßte dann wegen unkontrollierbarer Verdunstungsverluste in einem Regen-  
messer gesondert bestimmt werden.

Neben meteorologisch bedingten Schwankungen des wahren Wertes, stati-  
stischen Fehlern (vor allem infolge heißer Teilchen) und den eben er-  
wähnten Schwankungen des Sammelwirkungsgrades bei der Probennahme stehen die Fehler bei der Aufbereitung der Proben im Vordergrund. Zur Überführung  
des anhaftenden Staubes wird der Trichter nach einer Expositionszeit von  
einer Woche mit 200 ml destilliertem Wasser ausgespült. Für die Aufbe-  
reitung der in Polyäthylenflaschen eingeholten Gesamtniederschlagsproben

wird folgendes Verfahren angewendet:

Die in Wasser löslichen bzw. unlöslichen Aktivitätsanteile im Niederschlag werden durch Filtern getrennt. Das Filtrat wird mit 100 mg NaCl als Träger unter Oberflächenverdampfern in Porzellanschalen eingedampft und ein bekannter Gewichtsanteil des Rückstandes in die Meßschalen überführt. Die Ausmessung des Filterrückstandes erfolgt getrennt nach dem Veraschen des Filters. Der beim Veraschen durch Flüchtigkeit der Substanz entstehende Aktivitätsverlust liegt im allgemeinen unter 10 % und wird vernachlässigt.

Die Ausmessung der Gesamtniederschlagspräparate erfolgt vier Tage nach Probennahme in einem automatischen Probenwechsler. Nach dieser Zeit sind die kurzlebigen Aktivitäten natürlicher Herkunft (Emanationsfolgeprodukte) bereits auf einen vernachlässigbaren Bruchteil abgeklungen, so daß die  $\beta$ -Messung nur noch die Falloutaktivität aus kerntechnischen Explosionen sowie RaD u. RaE als langlebige Rn-Folgeprodukte erfaßt.

Als Detektor wird ein im  $\beta$ -Plateau betriebenes Proportionalzählrohr (Methandurchflußzählrohr FH 407) verwendet, das zur Schaffung definierter Feldverhältnisse mit einer goldbedampften Folie von  $1 \text{ mg/cm}^2$  Flächenbelegung abgeschlossen ist. Da das Ansprechvermögen für  $\gamma$ -Strahlung gering ist,  $\alpha$ -Strahlung im Fallout kaum vorkommt und darüberhinaus weitgehend durch Fenster-, Luft- und Selbstabsorption eliminiert wird, werden fast ausschließlich  $\beta$ -Strahlen nachgewiesen. Zur Erzielung einer ausreichenden statistischen Genauigkeit werden 1000 Impulse vorgewählt und die zugehörigen Meßzeiten von einem Zeitdrucker registriert.

Die Kalibrierung der Zählordnung erfolgt mit KCl als konventionellem Standardpräparat für die  $\beta$ -Aktivität der Spaltprodukte im Fallout. Dabei wird der Ausbeutefaktor in Abhängigkeit von der Flächenbelegung der Meßschale ermittelt. Die Extrapolation auf Schichtdicke Null ergibt den effektiven Raumwinkel der Zählordnung, d.h. den Geometrie-Faktor (einschließlich Rückstreuung). Streng genommen gelten die Korrekturfaktoren dann natürlich nur für Präparate mit K-40-ähnlichen  $\beta$ -Spektren; jedoch wird angenommen, daß das Ansprechvermögen für das komplexe und mit dem Alter wechselnde Spaltproduktgemisch nicht wesentlich von der Nachweisempfindlichkeit für K-40 abweicht.

Tab. 10

$\beta$ -Aktivität des Gesamtniederschlages (Luftstaub und Regen) in $\text{mc/km}^2$ Woche					
Probennahme		Niederschlag	$\beta$ - Aktivität		
Ort	Zeitraum	$\text{l/m}^2$ . Woche	Filtrat	Rückstand	Gesamt
Kernforschungs- anlage	28.12.59 - 4. 1.60	22,0	3,30	0,19	3,49
	4. 1.60 - 11. 1.60	14,2	0,38	0,42	0,80
	11. 1.60 - 18. 1.60	10,8	0,36	0,11	0,27
	18. 1.60 - 25. 1.60	6,8	0,11	0,27	0,38
	25. 1.60 - 1. 2.60	14,4	0,13	0,21	0,34
	1. 2.60 - 8. 2.60	4,8	0,10	< 0,03	0,11
	8. 2.60 - 15. 2.60	8,2	0,22	< 0,03	0,24
	15. 2.60 - 22. 2.60	5,4	0,19	0,11	0,30
	22. 2.60 - 29. 2.60	17,8	0,22	0,17	0,39
	29. 2.60 - 7. 3.60	6,4	1,34	0,39	1,73
	7. 3.60 - 14. 3.60	2,6	0,26	0,13	0,39
	14. 3.60 - 21. 3.60	2,6	0,17	0,05	0,22
	21. 3.60 - 28. 3.60	16,0	0,41	0,30	0,71
	28. 3.60 - 4. 4.60	2,4	0,23	0,06	0,29
	4. 4.60 - 11. 4.60	14,0	1,30	0,50	1,80
	11. 4.60 - 19. 4.60	23,6	0,43	-	0,43
	19. 4.60 - 25. 4.60	3,2	0,74	0,21	0,95
	25. 4.60 - 2. 5.60	18,2	0,27	0,25	0,52
	2. 5.60 - 9. 5.60	-	0,07	0,12	0,19
	9. 5.60 - 16. 5.60	56,6	0,94	0,77	1,71
	16. 5.60 - 23. 5.60	38,0	0,34	0,84	1,18
	23. 5.60 - 30. 5.60	20,0	0,16	0,16	0,32
	1. 6.60 - 7. 6.60	6,0	0,25	0,13	0,38
	7. 6.60 - 13. 6.60	16,0	0,31	0,58	0,89
	13. 6.60 - 20. 6.60	4,6	0,18	0,18	0,36
	20. 6.60 - 27. 6.60	18,2	0,42	0,32	0,74
	27. 6.60 - 4. 7.60	6,0	0,28	0,08	0,36
	4. 7.60 - 11. 7.60	54,0	0,26	0,53	0,79
	11. 7.60 - 18. 7.60	32,6	0,37	0,37	0,74
	18. 7.60 - 25. 7.60	19,4	0,21	0,31	0,51
	1. 8.60 - 8. 8.60	46,8	0,15	0,18	0,33
	8. 8.60 - 15. 8.60	15,0	0,35	0,47	0,82
	15. 8.60 - 22. 8.60	47,0	0,25	0,38	0,63
	22. 8.60 - 29. 8.60	42,0	0,28	0,27	0,55
	29. 8.60 - 5. 9.60	58,0	0,15	0,33	0,48
	5. 9.60 - 12. 9.60	20,0	0,15	0,28	0,43
	12. 9.60 - 19. 9.60	11,0	0,17	0,80	0,97
	19. 9.60 - 26. 9.60	47,4	0,20	0,11	0,31
	26. 9.60 - 3.10.60	18,0	0,16	0,15	0,31
	3.10.60 - 10.10.60	21,0	0,15	0,05	0,20
	10.10.60 - 17.10.60	52,4	0,05	0,10	0,15
	17.10.60 - 24.10.60	27,6	0,19	0,11	0,30
	24.10.60 - 31.10.60	39,0	0,34	0,07	0,42
	6.11.60 - 12.11.60	26,0	0,22	0,06	0,28
	12.11.60 - 19.11.60	8,0	0,23	0,03	0,25
	19.11.60 - 26.11.60	14,4	0,05	0,05	0,09
	26.11.60 - 3.12.60	39,0	0,10	0,08	0,18
	3.12.60 - 10.12.60	57,0	0,18	0,06	0,24
	10.12.60 - 17.12.60	7,4	0,12	0,10	0,22
	17.12.60 - 24.12.60	6,0	0,07	< 0,03	0,08
	24.12.60 - 31.12.60	25,0	0,22	0,16	0,38
Jülich-Süd BAW	28.12.59 - 4. 1.60	41,8	4,82	0,12	4,94

Tab.10 Fortsetzung

Probennahme		Niederschlag	$\beta$ -Aktivität.		
Ort	Zeitraum	$l/m^2$ . Woche	Filtrat	Rückstand	Gesamt
Jülich-Süd BAW	4. 1.60 - 11. 1.60	13,8	0,19	0,14	0,33
	11. 1.60 - 18. 1.60	9,8	0,15	0,20	0,35
	18. 1.60 - 25. 1.60	8,4	0,13	0,14	0,27
	25. 1.60 - 1. 2.60	36,6	0,32	0,23	0,55
	1. 2.60 - 8. 2.60	4,8	0,11	< 0,03	0,12
	8. 2.60 - 15. 2.60	15,6	0,25	0,04	0,29
	15. 2.60 - 22. 2.60	4,4	0,13	0,06	0,19
	22. 2.60 - 29. 2.60	34,0	0,72	0,38	1,10
	29. 2.60 - 7. 3.60	6,4	1,26	0,57	1,83
	7. 3.60 - 14. 3.60	5,6	0,33	0,07	0,40
	14. 3.60 - 21. 3.60	5,6	0,17	0,06	0,23
	21. 3.60 - 28. 3.60	33,0	0,54	0,39	0,93
	28. 3.60 - 4. 4.60	4,0	0,07	0,08	0,15
	4. 4.60 - 11. 4.60	32,3	1,62	0,73	2,35
	11. 4.60 - 18. 4.60	28,0	1,02	0,40	1,42
	18. 4.60 - 25. 4.60	7,2	0,51	0,53	1,04
	25. 4.60 - 2. 5.60	19,0	0,24	0,37	0,61
	2. 5.60 - 9. 5.60	1,8	0,55	0,24	0,79
	9. 5.60 - 16. 5.60	52,0	0,79	1,64	2,43
	16. 5.60 - 23. 5.60	47,8	0,21	1,32	1,53
	23. 5.60 - 30. 5.60	34,8	0,15	0,64	0,79
	1. 6.60 - 7. 6.60	6,0	0,23	0,33	0,56
	7. 6.60 - 13. 6.60	8,8	0,13	0,21	0,34
	13. 6.60 - 20. 6.60	13,6	0,13	0,53	0,66
	20. 6.60 - 27. 6.60	19,4	0,55	0,47	1,02
	27. 6.60 - 4. 7.60	8,0	0,21	0,23	0,44
	4. 7.60 - 11. 7.60	51,0	0,28	0,72	1,00
	11. 7.60 - 18. 7.60	33,2	0,24	0,63	0,87
	18. 7.60 - 25. 7.60	18,0	0,18	0,40	0,58
	1. 8.60 - 8. 8.60	54,0	0,11	0,13	0,24
	8. 8.60 - 15. 8.60	14,2	0,25	0,75	1,00
	15. 8.60 - 22. 8.60	48,0	0,25	0,49	0,74
	22. 8.60 - 29. 8.60	46,0	0,16	0,42	0,58
	29. 8.60 - 5. 9.60	48,4	0,13	0,32	0,45
	5. 9.60 - 12. 9.60	30,0	0,12	0,33	0,45
	12. 9.60 - 19. 9.60	11,0	0,13	0,09	0,22
	19. 9.60 - 26. 9.60	60,0	0,23	0,18	0,41
	26. 9.60 - 3.10.60	17,8	0,09	0,09	0,18
	3.10.60 - 10.10.60	24,0	0,22	0,16	0,38
	10.10.60 - 17.10.60	51,2	0,17	0,12	0,29
	17.10.60 - 24.10.60	47,2	0,08	0,21	0,29
	24.10.60 - 31.10.60	38,8	0,16	0,14	0,30
	6.11.60 - 12.11.60	42,0	0,07	0,01	0,08
	12.11.60 - 19.11.60	8,2	0,09	0,07	0,16
	19.11.60 - 26.11.60	18,4	0,07	0,05	0,12
	26.11.60 - 3.12.60	40,0	0,06	0,10	0,16
	3.12.60 - 10.12.60	54,0	0,05	0,08	0,14
	10.12.60 - 17.12.60	9,4	0,06	0,12	0,18
	17.12.60 - 24.12.60	7,0	0,19	< 0,03	0,21
	24.12.60 - 31.12.60	31,4	0,10	0,03	0,13
Jülich (Wasserwerk)	28.12.59 - 4. 1.60	21,4	0,26	0,10	0,75
	4. 1.60 - 11. 1.60	8,8	0,14	0,25	0,39
	11. 1.60 - 18. 1.60	8,0	0,13	0,27	0,40
	18. 1.60 - 25. 1.60	5,6	0,20	0,49	0,69
	25. 1.60 - 1. 2.60	14,4	0,18	0,11	0,29
	1. 2.60 - 8. 2.60	2,2	0,13	< 0,03	0,14
	8. 2.60 - 15. 2.60	6,8	0,24	0,05	0,29
	15. 2.60 - 22. 2.60	3,2	0,16	0,07	0,23

Tab.10 Fortsetzung

Probennahme		Niederschlag	$\beta$ -Aktivität,		
Ort	Zeitraum	$l/m^2$ . Woche	Filtrat	Rückstand	Gesamt
	22. 2.60 - 29. 2.60	18,4	0,79	0,24	1,03
	29. 2.60 - 7. 3.60	4,4	1,43	0,34	1,77
	7. 3.60 - 14. 3.60	2,6	0,16	0,06	0,22
	14. 3.60 - 21. 3.60	2,6	0,37	0,05	0,42
	21. 3.60 - 28. 3.60	16,4	0,22	0,14	0,36
	28. 3.60 - 4. 4.60	2,6	0,15	0,06	0,21
	4. 4.60 - 11. 4.60	11,0	0,91	0,76	1,67
	11. 4.60 - 19. 4.60	13,8	0,60	0,23	0,83
	19. 4.60 - 25. 4.60	1,6	0,64	0,23	0,87
	25. 4.60 - 2. 5.60	10,8	0,18	0,21	0,39
	2. 5.60 - 9. 5.60	0,4	0,23	0,07	0,30
	9. 5.60 - 16. 5.60	38,0	0,87	0,61	1,48
	16. 5.60 - 23. 5.60	33,0	0,35	0,77	1,12
	23. 5.60 - 30. 5.60	15,0	0,08	0,07	0,15
Stetternich (Jägersruh)	28.12.59 - 4. 1.60	22,2	0,56	0,19	0,75
	4. 1.60 - 11. 1.60	9,4	0,41	0,74	1,16
	11. 1.60 - 18. 1.60	11,0	0,16	0,58	0,74
	18. 1.60 - 25. 1.60	6,0	0,31	0,12	0,43
	25. 1.60 - 1. 2.60	14,4	0,16	0,25	0,41
	1. 2.60 - 8. 2.60	28,0	0,07	< 0,03	0,09
	8. 2.60 - 15. 2.60	7,0	0,17	0,05	0,22
	15. 2.60 - 22. 2.60	3,0	0,13	0,15	0,28
	22. 2.60 - 29. 2.60	18,6	0,55	0,22	0,78
	29. 2.60 - 7. 3.60	3,4	0,85	0,30	1,15
	7. 3.60 - 14. 3.60	2,8	0,40	0,09	0,49
	14. 3.60 - 21. 3.60	2,8	0,16	0,06	0,22
	21. 3.60 - 28. 3.60	16,6	0,33	0,36	0,69
	28. 3.60 - 4. 4.60	2,0	0,07	0,04	0,11
	4. 4.60 - 11. 4.60	11,0	0,80	0,52	1,32
	11. 4.60 - 19. 4.60	16,6	0,44	0,21	0,65
	19. 4.60 - 25. 4.60	3,2	0,28	0,20	0,48
	25. 4.60 - 2. 5.60	11,40	0,24	0,16	0,40
	2. 5.60 - 9. 5.60	0,4	0,24	0,15	0,39
	9. 5.60 - 16. 5.60	36,0	0,75	0,62	1,37
Hambach (Wasserwerk)	16. 5.60 - 23. 5.60	26,6	0,42	0,05	0,92
	23. 5.60 - 30. 5.60	15,4	0,17	0,15	0,32
	28.12.59 - 4. 1.60	36,2	0,38	0,19	0,57
	4. 1.60 - 11. 1.60	9,2	0,56	0,17	0,73
	11. 1.60 - 18. 1.60	9,8	0,44	0,29	0,73
	18. 1.60 - 25. 1.60	4,0	0,17	0,20	0,37
	25. 1.60 - 1. 2.60	29,0	0,29	0,31	0,60
	1. 2.60 - 8. 2.60	2,4	0,08	0,03	0,11
	8. 2.60 - 15. 2.60	9,2	0,31	0,24	0,55
	15. 2.60 - 22. 2.60	2,4	0,12	< 0,03	0,14
	22. 2.60 - 29. 2.60	33,6	0,33	0,17	0,50
	29. 2.60 - 7. 3.60	3,4	0,83	0,20	1,03
	7. 3.60 - 14. 3.60	3,8	0,29	0,08	0,37
	14. 3.60 - 21. 3.60	3,8	0,21	< 0,03	0,23
	21. 3.60 - 28. 3.60	17,0	0,73	0,33	1,06
	28. 3.60 - 4. 4.60	1,0	0,14	0,07	0,21
	4. 4.60 - 11. 4.60	22,6	0,82	0,63	1,45
	11. 4.60 - 19. 4.60	17,0	1,40	0,51	1,91
	19. 4.60 - 25. 4.60	4,4	0,43	0,21	0,64
	25. 4.60 - 2. 5.60	10,8	0,15	0,15	0,30
KFA Zentralbibliothek Jülich	2. 5.60 - 9. 5.60	0,6	0,20	0,09	0,29
	9. 5.60 - 16. 5.60	43,0	0,55	0,75	1,30
	16. 5.60 - 23. 5.60	45,0	0,40	0,87	1,27
	23. 5.60 - 30. 5.60	14,0	0,12	0,15	0,27

### 2.133 Meßergebnisse

Die Meßwerte der Flächenaktivität werden getrennt nach löslichem Anteil (Filtrat), unlöslichem Anteil (Rückstand) und Gesamtaktivität in der Einheit  $\text{mc}/\text{km}^2$ . Woche angegeben (Tab.10). Dazu sind die Niederschlagsmengen ( $1/\text{m}^2$ .Woche) eingetragen, die an den jeweiligen Probennahmeorten in den Hibernia-Trichtern gesammelt worden sind. Wir verzichten aber ausdrücklich auf eine Angabe der spezifischen Aktivität des Niederschlages (etwa in  $\text{pc}/1$ ), da der Aktivitätsanteil des Staubes nach unserem Probennahmeverfahren nicht für sich bestimmbar ist und daher die Angabe einer auf die Regenmenge bezogenen spezifischen Aktivität problematisch bleiben muß.

### 2.134 Diskussion

Da im Jahr 1960 die Gesamtniederschlagsaktivität im wesentlichen konstant war, ist eine Angabe von Mittelwerten zulässig. Diese sind in Tab.11 für die einzelnen Probennahmestellen zusammengestellt worden. Die Meßergebnisse zeigen keine signifikanten Unterschiede in der Falloutaktivität an den einzelnen Meßstellen und stehen damit im Einklang mit der Erwartung eines innerhalb der Abmessungen des Überwachungsgebietes räumlich homogen verteilten Fallout. Bei großer räumlicher und zeitlicher Distanz von einer Kernexplosion ist eine völlige Gleichverteilung des Fallout über größere Flächen zu erwarten. Während der troposphärische Fallout, der durch Selbstreinigungsvorgänge der Troposphäre innerhalb weniger Wochen abgeschieden wird (mittlere Verweilzeit ca. 3-4 Wochen), noch eine Verteilung hauptsächlich längs des Breitengrades des Explosionsortes erfährt, liegt bei dem besonders bei thermonuklearen Explosionen entstehenden stratosphärischen Fallout eine weltweite Verteilung über die ganze Erdoberfläche vor (23), (24), (25). Das Verteilungsmuster zeigt aber eine ausgeprägte Abhängigkeit vom Breitengrad (vgl. z.B.(26)). An dieser Stelle sei erwähnt, daß nach Untersuchungen von HERMANN und Mitarbeitern (27) 1957 etwa 85 % des Sr-Fallout aus der Stratosphäre stammen. Gegenwärtig ist mit praktisch hundertprozentigem Stratosphärenanteil zu rechnen.

Tab.11

Langlebige  $\beta$ -Aktivität des Gesamtniederschlags  
Mittelwerte für alle Meßstellen im Jahre 1960<sup>(1)</sup>

Probennahmestelle	Niederschlagsmen- ge (l/m <sup>2</sup> . Woche)	Aktivität in mc/km <sup>2</sup> . Woche			Löslicher Anteil %
		Filtrat	Rückstand	Gesamt	
Kernforschungsanlage	17,8	0,34	0,23	0,57	60
Jülich-Süd (BAW)	21,7	0,37	0,31	0,68	54
Jülich (Wasserwerk)	7,5	0,38	0,23	0,61	62
Stetternich (Jägersruh)	7,5	0,34	0,23	0,57	60
Hambach (Wasserwerk)	10,6	0,40	0,25	0,65	61
Mittelwerte	13,0	0,37	0,25	0,62	60

(1) Für Jülich, Stetternich und Hambach liegen nur bis Mai 1960 Meßergebnisse vor.

Wegen der Homogenität des Atombombenfallout wurden die Probennahmestellen Jülich, Stetternich und Hambach ab Juni 1960 aufgegeben. Bei den beibehaltenen Meßstellen Kernforschungsanlage und Jülich-Süd ist die Niederschlagsmenge pro Woche gemittelt über das ganze Jahr etwa doppelt so groß wie bei den vorstehenden Probennahmeorten, weil im zweiten Halbjahr erheblich größere Niederschläge zu verzeichnen waren. Die mittlere dem Boden zugeführte Falloutaktivität war von der integralen Niederschlagsmenge jedoch unabhängig. Obwohl in Einzelfällen je nach Bildungsmechanismus, Dauer und Stärke des Niederschlags durchaus Zusammenhänge zwischen der Regenmenge und der spezifischen (Volumen-)Aktivität des Niederschlags vorkommen können, erweist sich im allgemeinen die dem Boden zugeführte (Flächen-)Aktivität gegenüber der spezifischen Aktivität als die unabhängigere und für die strahlenbiologische Betrachtungsweise charakteristischere Größe.

Die spezifische Aktivität wurde nur zu Vergleichszwecken ausgerechnet, sie beträgt im Jahresdurchschnitt 1960 48 pc/l. Zwischen der spezifischen Aktivität von Luft und Niederschlägen besteht größenordnungsmäßig ein fester zahlenmäßiger Zusammenhang. Im Berichtsjahr ergab sich im Mittel folgendes Verhältnis:



$$\frac{\text{langlebige } \beta\text{-Aktivität des Niederschlages in pc/l}}{\text{langlebige } \beta\text{-Aktivität der Luft in pc/l}} = 5 \cdot 10^5 \quad ,$$

entsprechend einer 500 000-fachen Anreicherung im Regen. Diese Konstante erlaubt es, sich einen groben Überblick über die dem Boden zugeführte Aktivität zu verschaffen, wenn nur die Aktivitätskonzentration in Luft und die Niederschlagsmenge gemessen worden sind, oder umgekehrt die Luftaktivität aus den Meßergebnissen der Niederschlagsaktivität abzuschätzen.

Aus Tab. 11 ist weiterhin ersichtlich, daß sich die Niederschlagsaktivität im Verhältnis 3:2 auf Filtrat und Rückstand der Flüssigkeit verteilt, d.h. der lösliche Aktivitätsanteil beträgt im Durchschnitt 60 %.

Verglichen mit unseren Meßergebnissen von 1958 ergaben sich 1960 wesentlich geringere Schwankungen der Einzelwerte untereinander (vgl. Tab.10), sog. "Ausreißer" sind kaum noch zu beobachten. Das läßt sich durch die Abnahme der Zahl bzw. Aktivität der heißen Teilchen erklären. Eigene Messungen liegen auf dem Gebiet der heißen Teilchen bisher nicht vor. Nach dem Eintreten des Betriebsfalles der Kernforschungsanlage sollen aber autoradiographische Verfahren eingesetzt werden. Messungen des Technischen Überwachungs-Vereins Köln ergaben das Auftreten von heißen Teilchen im Jahre 1961 nur während der auf die französischen Atomwaffentests in der Sahara folgenden Wochen (28).

Der statistische Zählfehler richtet sich bei fester Impulsvorwahl (1 000 Impulse) nur noch nach der jeweiligen Netto-Impulsrate und ist für den Einzelfall nach Formel (13) zu berechnen. Bei einer Netto-Impulsrate von 2 Imp/min erhält man z.B. einen Fehler von 40 %. Im Jahresmittel liegt der statistische Fehler des Gesamtwertes unter 50 % und ist damit kleiner als der geschätzte methodische Fehler.

Die systematischen Fehlerquellen bei der Probennahme, Überführung und Aufbereitung sind schon unter 2.132 aufgeführt worden. Die zahlenmäßige Abweichung vom wahren Wert kann naturgemäß nicht angegeben werden. Es dürfte sich dabei nicht um einen konstanten, sondern um einen u.a. wetterabhängigen Faktor (Niederschläge, Wind) handeln. Immerhin ist die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse bei der Verwendung gleicher Probennahmegefäße

durch das vorliegende Erfahrungsmaterial bis auf etwa den Faktor 2 gesichert.

In Abb.8 ist der zeitliche Verlauf der monatlich dem Boden zugeführten  $\beta$ -Aktivität seit Beginn unserer Messungen im April 1958 dargestellt. Da seit Oktober 1958 keine kerntechnischen Versuche mit nennenswerter Spaltprodukterzeugung mehr stattgefunden haben, ist die Gesamtktivität der Atmosphäre einerseits durch Selbstreinigungsvorgänge, andererseits durch radioaktiven Zerfall um mehrere Größenordnungen zurückgegangen. Dabei hat natürlich eine relative Anreicherung der langlebigen Spaltprodukte (Sr-90, Cs-137) im Verhältnis zu den kurzlebigen stattgefunden.

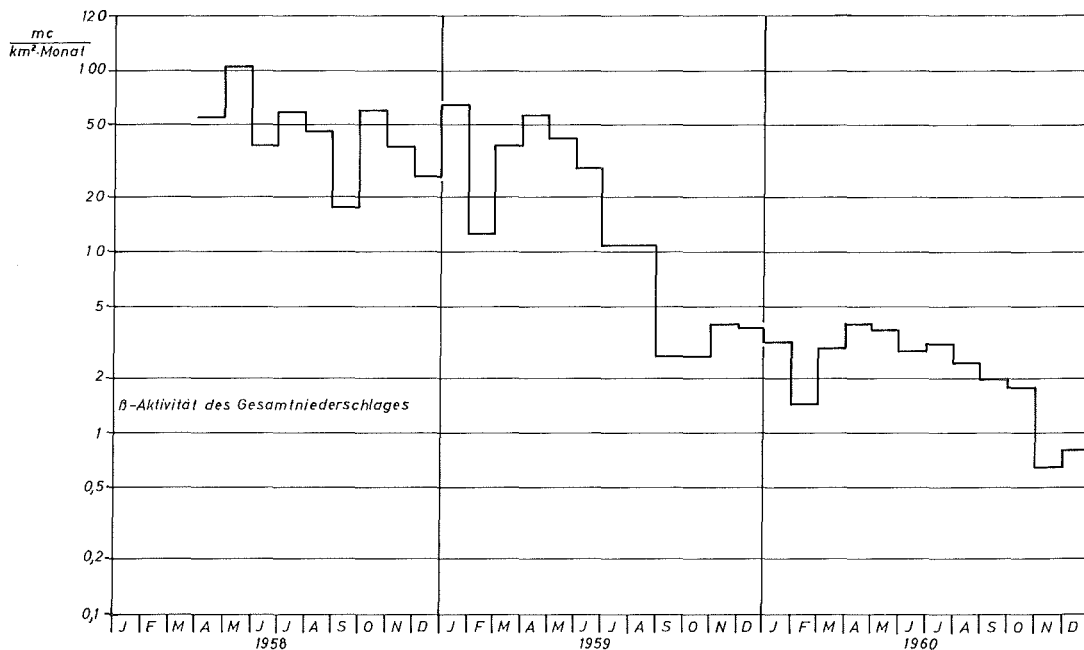


Abb.8. Monatlich dem Boden zugeführte langlebige  $\beta$ -Aktivität in den Jahren 1958-1960

Während im Jahre 1958  $590 \text{ mc/km}^2$  und 1959 noch  $280 \text{ mc/km}^2$  langlebige Aktivität dem Boden zugeführt wurde, liegt der für 1960 gemessene Wert nur noch bei  $32 \text{ mc/km}^2$ . (Das Abklingen durch radioaktiven Zerfall wurde dabei nicht berücksichtigt). Die Ausmessung der integralen Bodenbelastung ergibt jedoch, daß nur ein Bruchteil der angegebenen Falloutaktivitätswerte auf Sr-90 zurückgeht (vgl. 2.31). Die Aktivität des langlebigen Fallout ist also um etwa den Faktor 20 zurückgegangen und zeigt z.Zt. immer noch eine rückläufige Tendenz. Es muß allerdings betont werden, daß dabei die biologische Gefährdung nicht um den gleichen Faktor reduziert wurde, da

ein laufend größer werdender Bruchteil der Falloutaktivität aus Sr-90 besteht und das Maximum der integralen Flächenbelegung mit Sr-90 erst erreicht sein wird, wenn die stratosphärischen Reservoirs sich erschöpfen. Die mittlere Verweilzeit der Spaltstoffe in der Stratosphäre beträgt nach neueren Untersuchungen nicht wie früher angenommen 15 Jahre, sondern liegt in mittleren Breiten eher in der Größenordnung von einem Jahr. Das Abklingen der Niederschlagsaktivitäten im Laufe des Jahres 1959 wurde im Frühjahr von einem Maximum unterbrochen (Abb.8). Dieses Ergebnis entspricht dem von BREWER (29) und DOBSON (30) mitgeteilten Tatbestand, daß es in den Frühjahrsmonaten in den mittleren und höheren Breiten zu einem verstärkten Austausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre kommt (vgl. (31), (32)). Zu entsprechenden Folgerungen kommen auch FRY und KURODA (33) aufgrund von Untersuchungen über das Verhältnis von Sr-89 : Ba-140 im Fallout.

Hinsichtlich des Zusammenhanges der Gesamtniederschlagsaktivität mit der Aktivität des Oberflächenwassers und der Regenmenge verweisen wir auf Abschnitt 2.234, Abb.21.

Bei einem Vergleich unserer Werte mit den von anderen Stationen angegebenen Niederschlagsaktivitäten ergibt sich innerhalb der zu erwartenden Fehlergrenzen im allgemeinen eine gute Übereinstimmung. Das gilt z.B. für die Werte der dem Boden zugeführten Aktivität, die vom Sonderausschuß Radioaktivität unter Zugrundelegung der Meßwerte von ca. 40 Meßstellen des Bundesgebietes referiert werden und trifft im besonderen Maße auf die Meßergebnisse des Technischen Überwachungs-Vereins Köln zu, der an denselben Probennahmeorten wie wir Niederschlagsaktivitäten gemessen hat (34).

Zur Untersuchung der Nuklidzusammensetzung von Falloutproben wurden nach den Kernwaffenversuchen in der Sahara  $\gamma$ -spektrometrische Analysen mit dem Telefunken-Graukeilspektrometer durchgeführt, wobei besonderes Augenmerk auf das Auftreten "frischer" Spaltprodukte gelegt wurde.

Als Auffänger dienten eigens für diese Untersuchung angefertigte Trichter mit  $1\text{ m}^2$  Auffangfläche, um für spektrometrische Zwecke ausreichende Aktivitäten zu erhalten. Wie bei den Routinemessungen wurden Wochenproben eingeholt und verarbeitet.

Eine Bestimmung der  $\beta$ -Aktivität wurde bei diesen Untersuchungen nicht vorgenommen, es erfolgte lediglich vor Aufnahme der Spektren eine Messung der Gesamt- $\gamma$ -Impulsrate, deren Verlauf in Abb.9 dargestellt ist. Da die Menge an Trockensubstanz von Präparat zu Präparat verschieden war, sind die gemessenen Impulsraten auf ein Gramm Trockensubstanz reduziert worden.

Qualitativ besteht zwischen dem Verlauf der hier gezeigten Treppenkurve und einer entsprechenden (hier nicht dargestellten) Kurve für die routinemäßig ermittelten  $\beta$ -Aktivitäten gute Übereinstimmung, d.h. in beiden Fällen ist ein Anstieg etwa 14 Tage nach dem jeweiligen Kernwaffentest zu verzeichnen. Es lassen sich aber aus der  $\gamma$ -Kurve keine quantitativen Schlüsse über die dem Boden zugeführten Aktivitäten ziehen, da eine Kalibrierung der Bohrlochszintillationssonde unter Berücksichtigung von Ausbeute, Geometriefaktor und ähnlichem nicht vorgesehen war.

Die Untersuchung lief vom 17.2.-25.5.60, d.h. es wurden insgesamt 14 Wochenproben eingeholt, die  $\gamma$ -spektrometrisch analysiert wurden. In Abb.10 sind die 4 interessantesten Spektrogramme zur Darstellung gebracht. Im Spektrum der Probe 1 lassen sich keine  $\gamma$ -Linien feststellen. Dieses Bild entspricht Spektren, die wir Ende des Jahres 1959 an verschiedenen Niederschlagsproben auch gemessen haben. Im Jahresbericht 1959 war darauf hingewiesen worden, daß sich lediglich die Linie des G-144 im Graukeilspektrogramm nachweisen ließ und das auch nicht in einer einzelnen Wochenprobe, sondern in dem Mischrückstand von 74 Einzelproben.

Das Spektrum der Probe 2 weist dagegen einige charakteristische  $\gamma$ -Linien auf, die sich nach Eichung des Graukeilspektrometers eindeutig als frische Spaltprodukte identifizieren lassen (Tab.12).

Die Peaks der Nuklide Nd-147, Te-132 und J-131 fehlen verständlicherweise sowohl in der zwischen den beiden Kernwaffentesten entnommenen Probe 3, als auch in einer 8 Wochen nach der Entnahme durchgeführten zweiten Messung der Probe 2. Das Spektrum der Probe 4, das dem zweiten Kernwaffentest zuzuordnen ist, enthält wieder die gleichen Nuklide wie die Probe 2 (35). Abklingkurven, über die z.T. von anderen Autoren (36) berichtet wird, konnten aus technischen Gründen noch nicht aufgenommen werden.

# Gammaspektren von Niederschlagsproben Febr. - Mai 1960

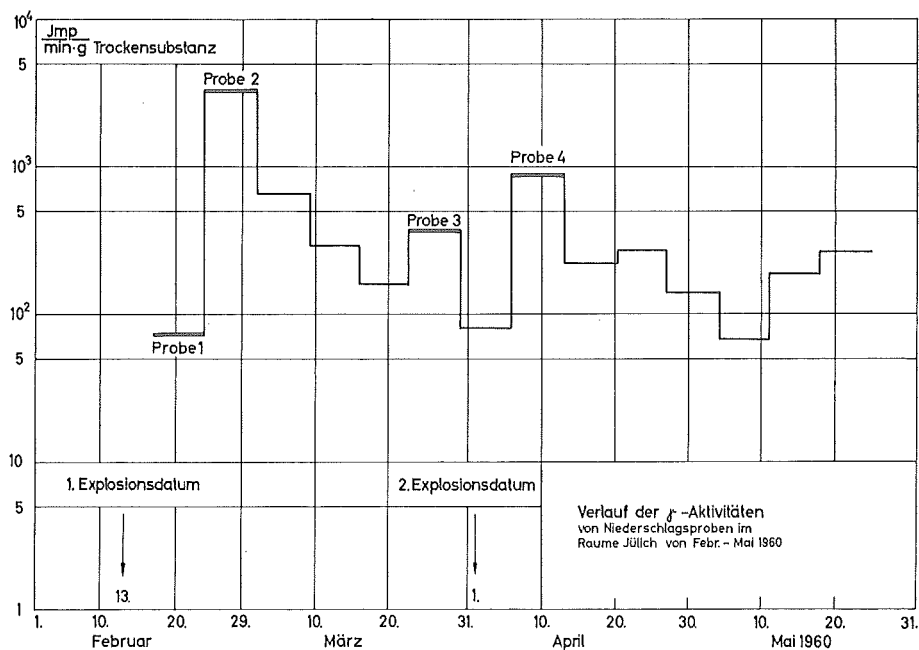
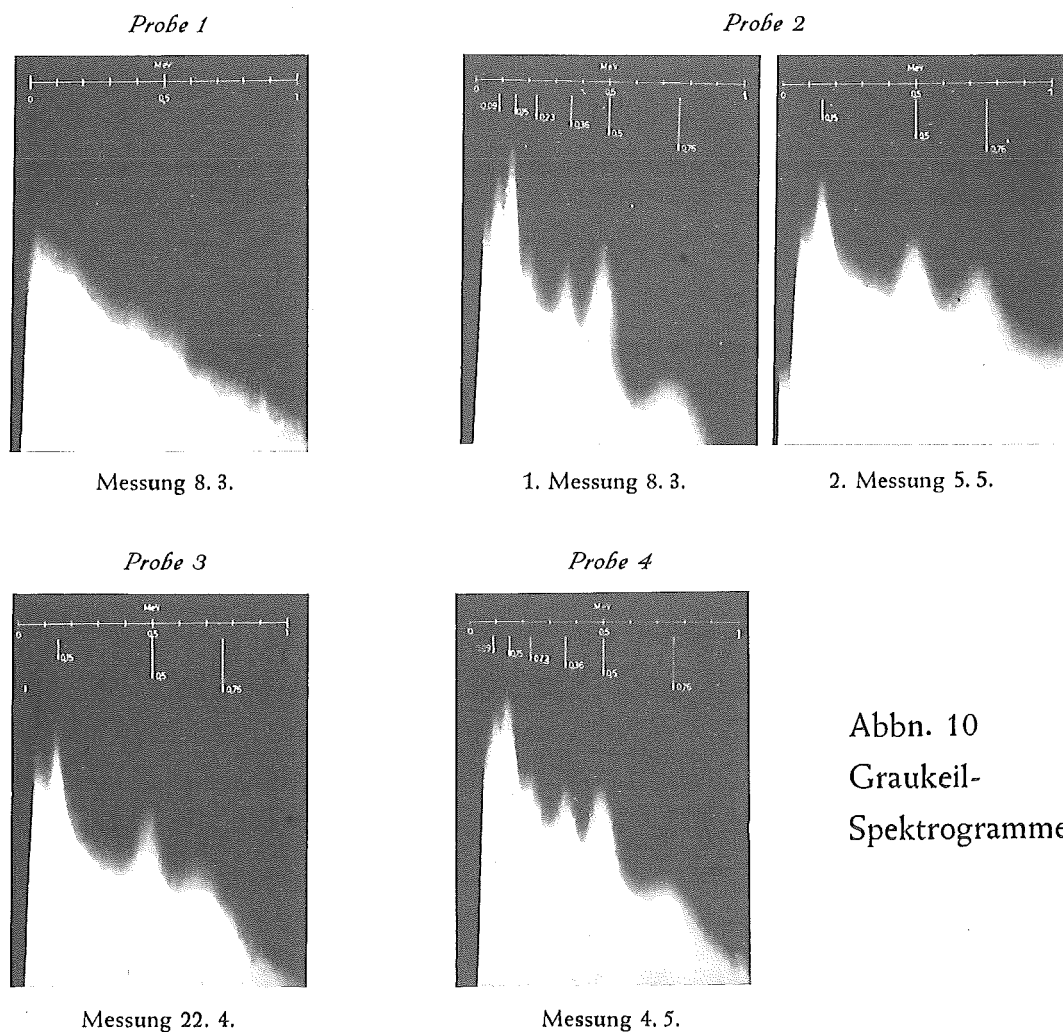


Abb. 9: Gesamt - Gamma - Aktivitäten



Abbn. 10  
Graukeil-  
Spektrogramme

Tab.12

Ergebnisse der Graukeilspektrometrie von vier Niederschlagsproben

Im Graukeilspektrogramm ermittelte Energie (MeV)	In Frage kommendes Nuklid			Proben				
	Symbol	Energie (MeV)	Halbwerts- zeit	1	2		3	4
					1. Mes- sung	2. Mes- sung		
0,09	Nd-147	0,09	11,1 d	0	+	0	0	+
0,15	Ce-141	0,14	31,1 d	0	+	+	+	+
	Ce-144	0,13	285 d					
0,23	Te-132	0,225	3,13 d	0	+	0	0	+
0,36	J -131	0,364	8 d	0	+	0	0	+
0,50	Ba-140	0,54	13 d	0	+	+	+	+
	Ru-103	0,495	40 d					
0,76	Zr- 95	0,757	65 d	0	+	+	+	+
	Nb- 95	0,768	35 d					

Zeichenerklärung zu Tab.12 : + Linie vorhanden; 0 Linie nicht vorhanden

Zur quantitativen Ermittlung der Nuklidzusammensetzung von Falloutproben wurden von uns erstmalig radiochemische Analysen durchgeführt. Dazu wurde der mit einem großen Auffangtrichter (s.o.) in einer bestimmten Zeit gesammelte Niederschlag eingedampft und der Rückstand untersucht. Die Analysen erstrecken sich auf die Bestimmung von Sr-90, Cs-137, Ce-144, Zr-95 und Ba-140, wobei im wesentlichen der von Osmond und Pratchett (37) angegebene Analysengang gewählt wurde. Die Ergebnisse sind in Tab.13 aufgeführt.

Die Sr-90/Y-90-Meßpräparate wurden mit Sr-90/Y-90-Eichpräparaten verglichen, während bei den übrigen Messungen (Cs-137, Ce-144, Zr-95 und Ba-140) in Ermangelung entsprechender Eichpräparate KCl-Präparate zur Eichung herangezogen wurden.

Tab.13

## Niederschlagsanalysen

	Monat	September	Oktober	November	Dezember
	Sammelzeit	12.9.-19.9.60	26.9.-31.10.60	1.11.-28.11.60	29.11.-27.12.60
Sr-90	pc/l	0,6	0,7	0,4	0,5
	c/km <sup>2</sup> . Monat	12	45	19	13
Cs-137	pc/l	-	0,3	0,4	0,7
	c/km <sup>2</sup> . Monat	-	21	21	17
Ce-144	pc/l	9,9	1,6	2,3	-
	c/km <sup>2</sup> . Monat	190	100	119	-
Zr-95	pc/l	-	0,6	1,0	-
	c/km <sup>2</sup> . Monat	-	42	56	-
Ba-140	pc/l	-	(4,5)	(6,7)	-
	c/km <sup>2</sup> . Monat	-	(300)	(350)	-

Die Ergebnisse sind in pc/l und in  $\mu\text{c}/\text{km}^2 \cdot \text{Monat}$  angegeben, wobei es sich bei letzteren um auf einen Monat extrapolierte Werte handelt, da die Sammelzeiten nicht genau einem Monat entsprachen.

Die Ba-140-Werte sind unsicher, da die Korrekturfaktoren für den Aktivitätsabfall von der Probennahme bis zur Analyse wegen der kurzen Halbwertszeit (12,8d) hier sehr groß ( $\approx 50$ ) sind.

## 2.14 Meteorologische Überwachung

### 2.141 Grundlagen

Das Gelände des Forschungszentrums liegt in dem nur geringfügig gegliederten Flachland, das sich zwischen der Eifel und der Nordsee erstreckt, in einem aufgelockerten Forstbestand südlich Stetternich, etwa 15 km von den Ausläufern des Eifelberglandes entfernt. Die nähere Umgebung zeigt eine schwache orographische Gliederung insofern, als der Standort im östlichen Teil der hier etwa 3,5 km breiten Rursenke gelegen ist. Das Forschungsgelände liegt in 90 m Höhe über NN in der flachen Talsohle der Senke, die auf beiden Seiten um etwa 20 m zum umgebenden Flachland emporsteigt. Die Rursenke verläuft an der Stelle in Richtung von SE nach NW an Jülich vorbei.

Einem Gutachten von Prof. ISRAEL (38) sowie einem weiteren, das durch das Zentralamt des Deutschen Wetterdienstes angefertigt wurde (39), ist zu entnehmen, daß in dem Klimagebiet, in welchem das Forschungszentrum liegt, in der freien Atmosphäre vorwiegend mit Winden aus westlichen Richtungen mit Zunahme der Windgeschwindigkeit bis zu einem Maximum in etwa 8 km Höhe zu rechnen ist. Die mittlere jährliche Windverteilung am Boden ergibt sich nach den Beobachtungen benachbarter Klimastationen wie in Tab.14 angegeben:

Tab.14

Windverteilung

	N	NE	E	SE	S	SW	W	NW	C
Windrichtung (%)	7	7	6	12	10	21	19	11	7
Windgeschwindigkeit (m/sec)	2.0	2.2	2.4	2.4	2.3	3.1	3.0	2.2	<0,5

Es ist dabei jedoch zu beachten, daß die Windverhältnisse vor allem in Bodennähe und bei Schwachwindlagen durch lokale Einflüsse eventuell eine merkliche Abweichung erfahren.

Für die Beurteilung der Stabilität und somit der Durchmischung innerhalb der bodennahen Luftschicht fehlen geeignete Beobachtungen. Um einen allge-



mein orientierenden Überblick bezüglich der Durchmischungsverhältnisse in der Atmosphäre über dem Forschungsgelände zu erhalten, wurde in dem Klimagutachten des Deutschen Wetterdienstes an Hand von Messungen in Köln in den Jahren 1936–1938 untersucht, wie oft sich von verschiedenen Höhen ab eine Luftschicht von 200 m Dicke mit einer mittleren Temperaturabnahme mit der Höhe von mindestens  $0,5\text{ }^{\circ}\text{C}/100\text{ m}$  einstellt. (Bei Temperaturabnahme von weniger als  $0,5\text{ }^{\circ}\text{C}/100\text{ m}$  und Temperaturzunahme mit der Höhe wird die Luftschichtung stabil und damit die Durchmischung innerhalb der betreffenden Schicht gering). Das Ergebnis ist in Tab.15 zusammengestellt.

Tab.15

Relative Häufigkeit (%) des Beginns einer mindestens 200 m dicken Schicht mit einem Temperaturgefälle von mindestens  $0,5\text{ }^{\circ}\text{C}/100\text{ m}$  unterhalb einer bestimmten Höhe nach Morgenaufstiegen in Köln (1936–38)

Höhe (m)	Winter	Frühjahr	Sommer	Herbst
am Boden	12	23	27	11
unterhalb 100	14	24	30	14
200	41	37	41	28
300	51	43	50	40

Wenn man diese Verhältnisse in Köln nun auch für die meteorologische Situation über dem Forschungsgelände als gültig annimmt, resultiert daraus für die Durchmischungsbedingungen in der bodennahen Luftschicht eine relativ ungünstige Lage; denn, wie man aus den Zahlenwerten von Tab.15 erkennt, wären günstige Durchmischungsbedingungen ja nach der Jahreszeit z.B. unterhalb 100 m nur zu 14, 24, 30 oder 40 Prozent gegeben. Es muß allerdings dabei beachtet werden,

- 1.) daß die Messungen, welche für diese Überlegung zugrunde gelegt sind, um die Zeit des Sonnenaufganges gemacht wurden, wo die Bodeninversionen am intensivsten ausgebildet sind, so daß man aus Tab.15 keine Aussagen über die tatsächliche Dauer der betrachteten Schichtungen machen kann,
- 2.) daß sich zuverlässige Angaben über die Stabilitätsverhältnisse der bodennahen Luftschichtung über dem Forschungsgelände nur an Hand von

Registrierungen der erforderlichen Meßgrößen machen lassen, weil lokale Gegebenheiten für die Ausbildung der Temperaturschichtung der Luft in Bodennähe von wesentlicher Bedeutung sind.

## 2.142 Methodik

Seit Juni 1959 werden nach den Richtlinien des Deutschen Wetterdienstes von unserer meteorologischen Station Klimabeobachtungen durchgeführt. In diesem Zusammenhang gehören dazu Messungen der Temperatur, des Luftdruckes, der relativen Luftfeuchte, des Dampfdruckes, des Niederschlages und der Sonnenscheindauer sowie Beobachtungen der Windverhältnisse.

Aufgabe dieser Wetterbeobachtungen ist es, eventuelle Zusammenhänge zwischen den Radioaktivitätsverhältnissen in der Atmosphäre und den jeweiligen meteorologischen Gegebenheiten zu untersuchen. Das Hauptinteresse der meteorologischen Beobachtungen gilt jedoch dem Studium der Ausbreitungsbedingungen von radioaktiv kontaminierter Abluft.

Für die Beurteilung der Ausbreitung von Luftverunreinigungen durch Fremdgase und Schwebeteilchen in der bodennahen Luftschicht sind etwa seit den Zwanziger-Jahren verschiedene Theorien geschaffen worden. Den praktischen Erfordernissen am nächsten kommen die Formeln, die von SUTTON (40) entwickelt wurden. Sie werden zur Abschätzung von Konzentrationen, die sich in der Umgebung einer Quelle für Luftverunreinigungen ergeben, auch meistens zugrunde gelegt. Für die Konzentration  $K$  in der Entfernung  $x, y, z$ , von einer Quelle ergibt sich die Beziehung:

$$K(x, y, z) = \frac{2 Q}{\pi C_y C_z \bar{u} x^{2-n}} \cdot e^{-x^n - 2 \left( \frac{y^2}{C_y^2} + \frac{z^2}{C_z^2} \right)} \quad (27)$$

Darin sind an meteorologischen Größen die mittlere horizontale Windgeschwindigkeit  $\bar{u}$  und eine dimensionslose Konstante  $n$  enthalten, die durch die Gleichung für das vertikale Windprofil

$$\frac{\bar{u}}{\bar{u}_1} = \left( \frac{z}{z_1} \right)^{\frac{n}{2-n}}$$

bestimmt ist.

$C_y, C_z$  = Diffusionskoeffizienten, die von dem vertikalen Windprofil und der Stabilität der Luftschichtung abhängig sind.

In der Theorie sind, um zu der angegebenen Beziehung zu kommen, mehrere notwendige, idealisierende Voraussetzungen gemacht, und man erhält deshalb nur wirklichkeitsnahe Ergebnisse aus der Formel für nicht zu wind-schwache und nicht zu stabile oder zu labile Luftschichtungen.

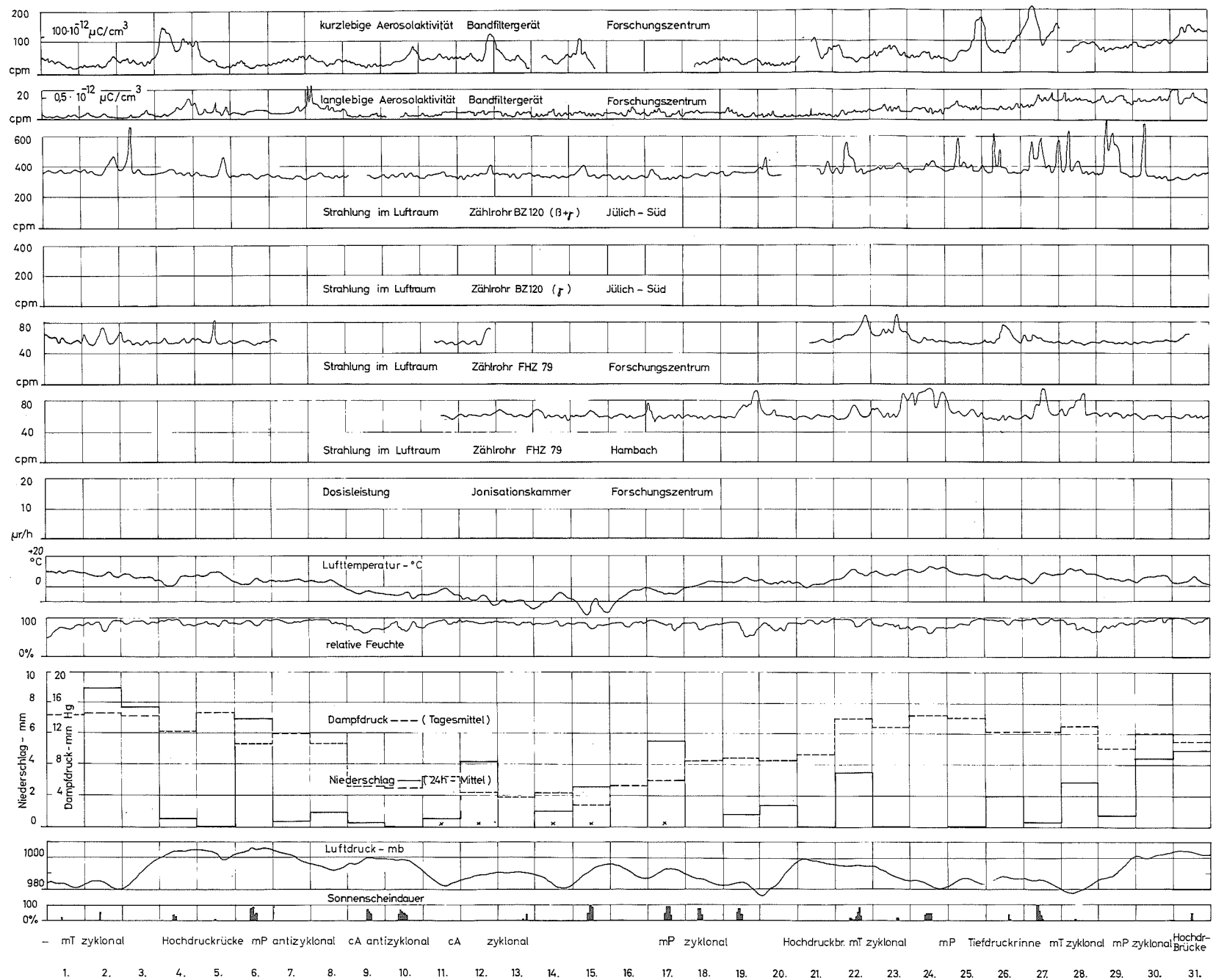
Um die notwendigen Meßgrößen zur Beurteilung der Diffusionsfähigkeit der Atmosphäre entsprechend der gegebenen Wetterlage zu erhalten, ist die Errichtung eines ca. 100 m hohen Beobachtungsturmes geplant, an dem Wind- und Temperatur-Registrieranlagen in verschiedenen Niveaus installiert werden können.

Zur Zeit steht der meteorologischen Station nur ein Beobachtungsturm von 35 m Höhe 300 m nordwestlich vom Abluftschornstein des Reaktors Merlin zur Verfügung. Hier werden seit Oktober 1960 Registrierungen von Windrichtung- und geschwindigkeit mit einem elektrischen Universalwind-schreiber (FUESS, 90 Z) durchgeführt. Der Windgeber ist auf einer 2 m hohen Stange über der obersten Plattform des Turmes installiert und befindet sich damit etwa 20 m über den Gipfeln des stark aufgelockerten Forstbestandes im Forschungsgelände.

#### 2.143 Ergebnisse

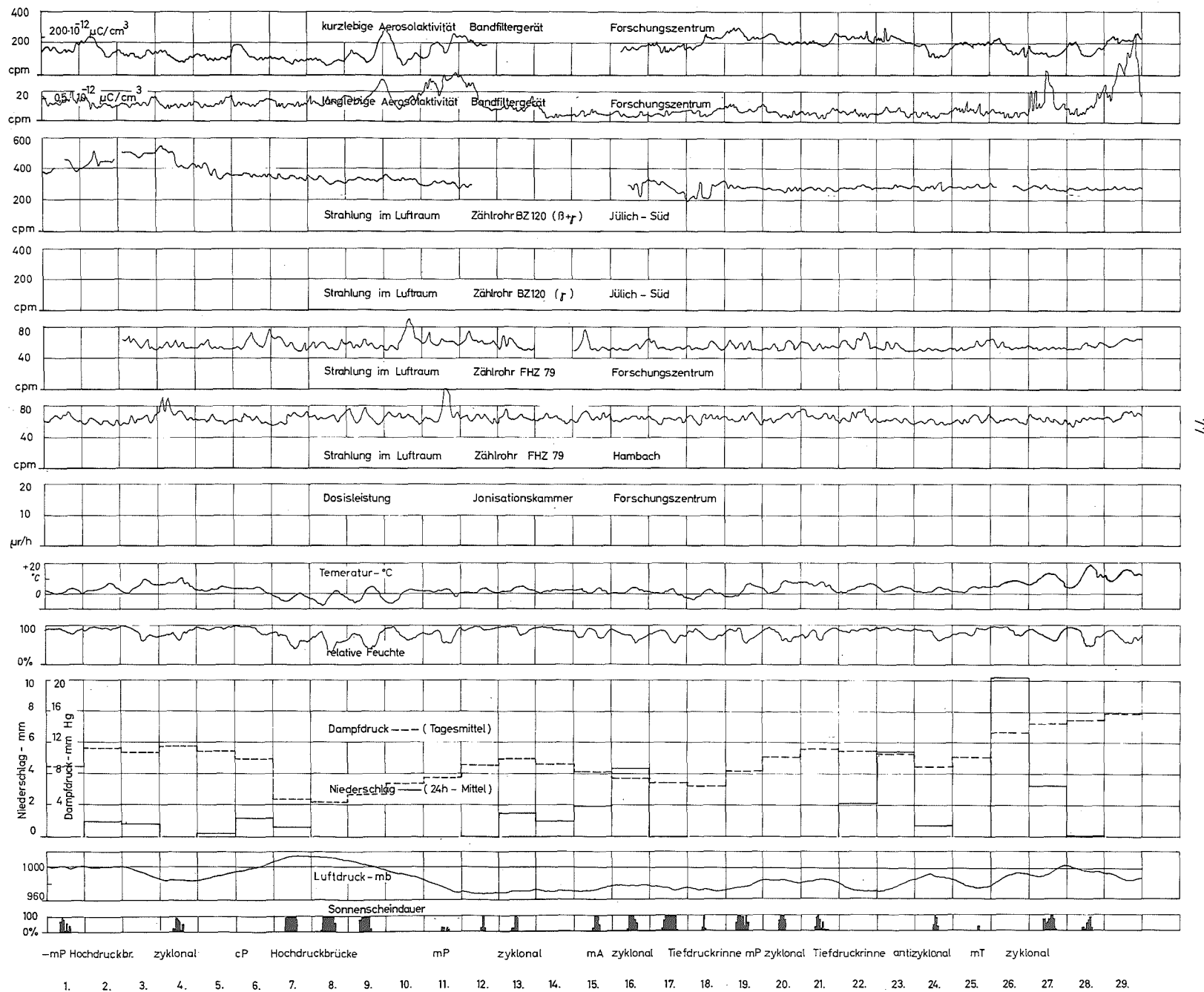
In der Abb. 11 sind zusammen mit den Registrierungen der Radioaktivität in der bodennahen Luft der Verlauf der Lufttemperatur und relativen Feuchte (in 2 m Höhe) nach Stundenmitteln, die Tagesmittel des Wasserdampfdruckes, die Niederschlagsmengen für jeweils 24 Stunden (07<sup>00</sup>-07<sup>00</sup>) sowie die zweistündlich gemessene Niederschlagsintensität, der Luftdruckverlauf (nach den Registrierungen der Klimastation Aachen) und die Sonnenscheindauer dargestellt. Ferner sind noch Angaben gemacht, die der allgemeinen Orientierung über die vorherrschenden Luftmassen-Änderungen und Zirkulationsverhältnisse dienen. Es bedeuten dabei:

- m = maritim (Luftkörper, die über den Ozean herangeführt werden).
- c = continental (Luftkörper, die sich längere Zeit über dem Festland befunden haben).
- A = Luftmassen, die unmittelbar aus arktischen Gebieten stammen.
- P = Luftmassen, die auf mehr oder weniger großen Umwegen aus nörd-polaren Gebieten,



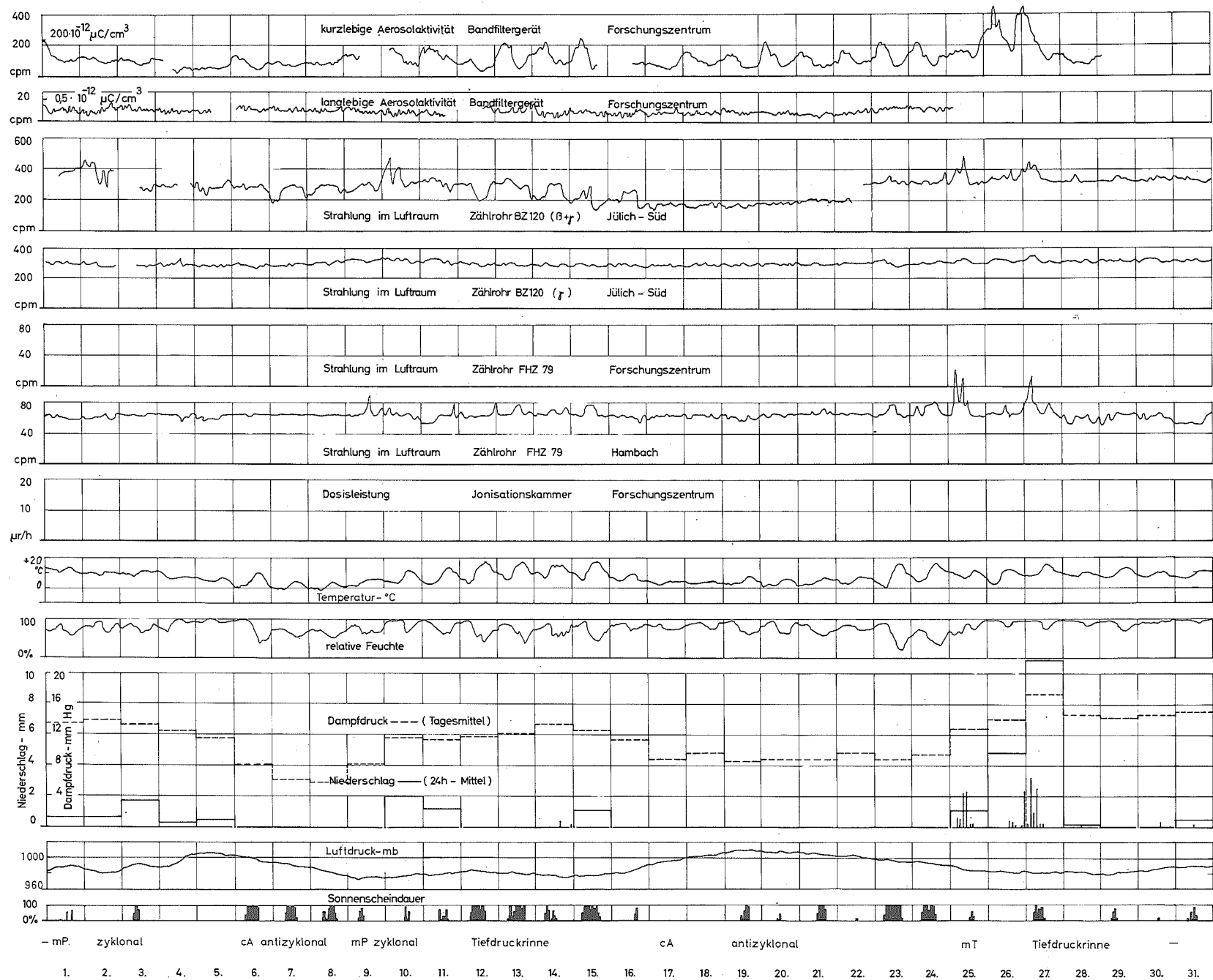
Januar 1960

Kontinuierliche Luftüberwachung  
GFKF Strahlenschutz



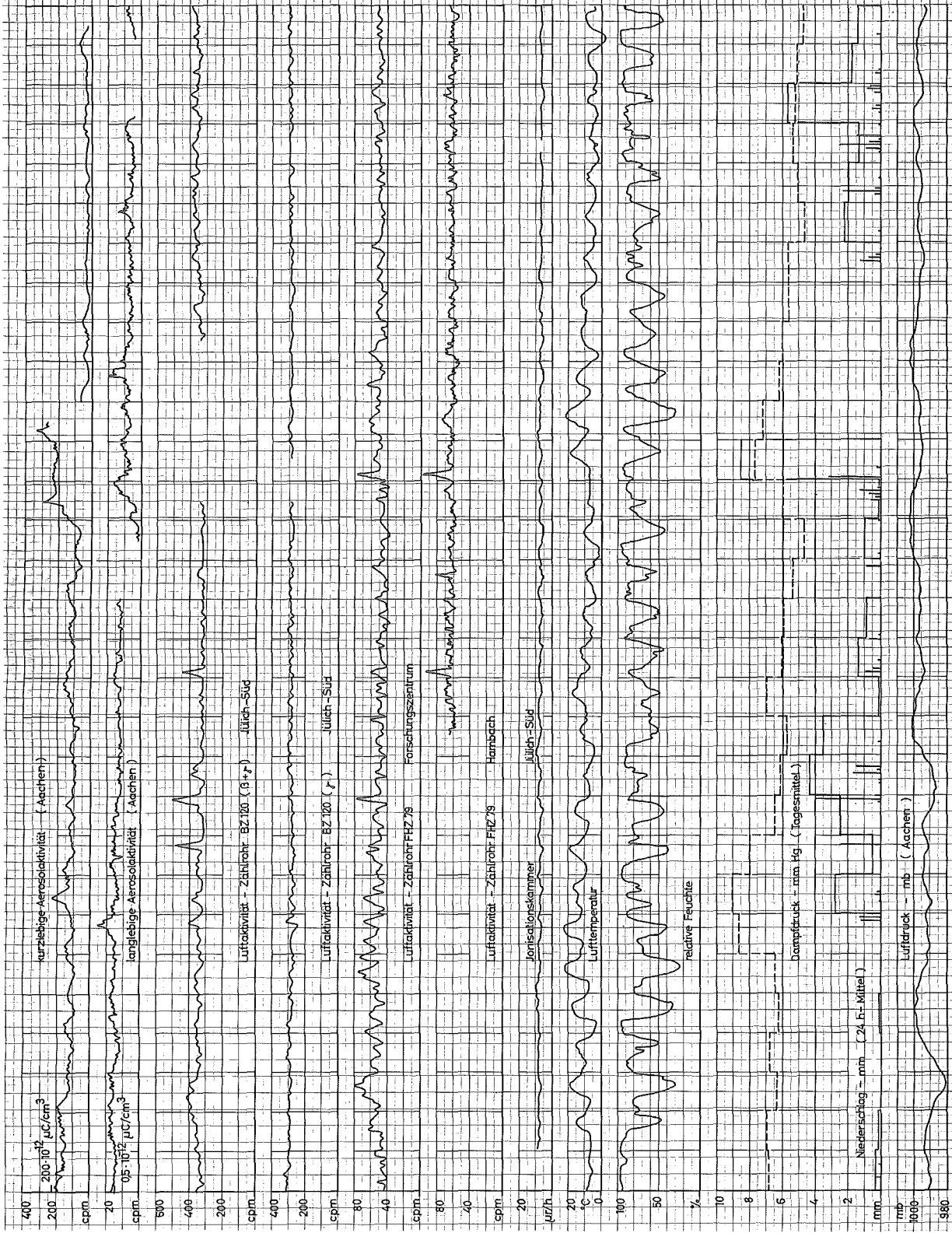
Februar 1960

Kontinuierliche Luftüberwachung  
GFKF Strahlenschutz



März 1960

Kontinuierliche Luftüberwachung  
GFKF  
Strahlenschutz

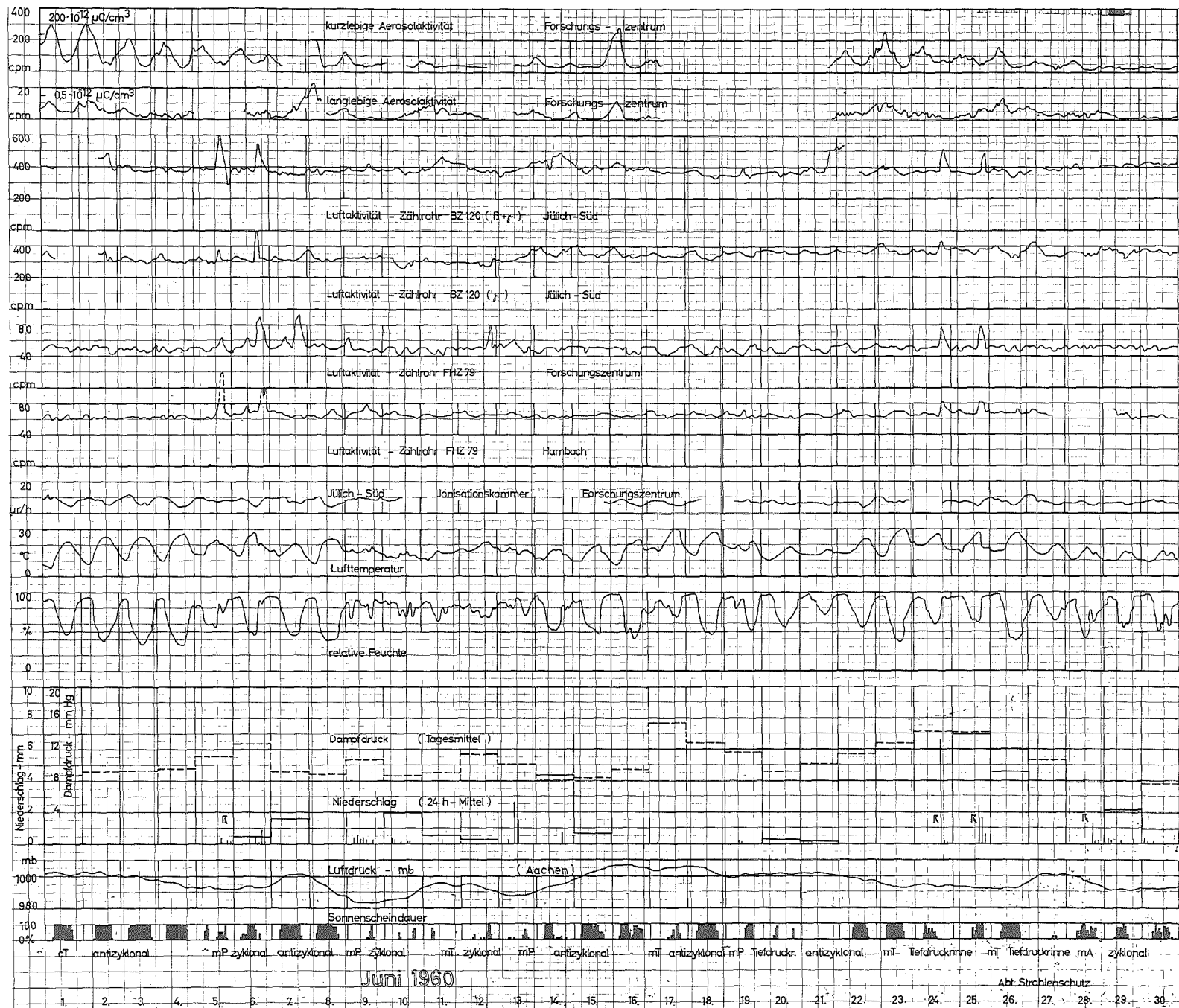


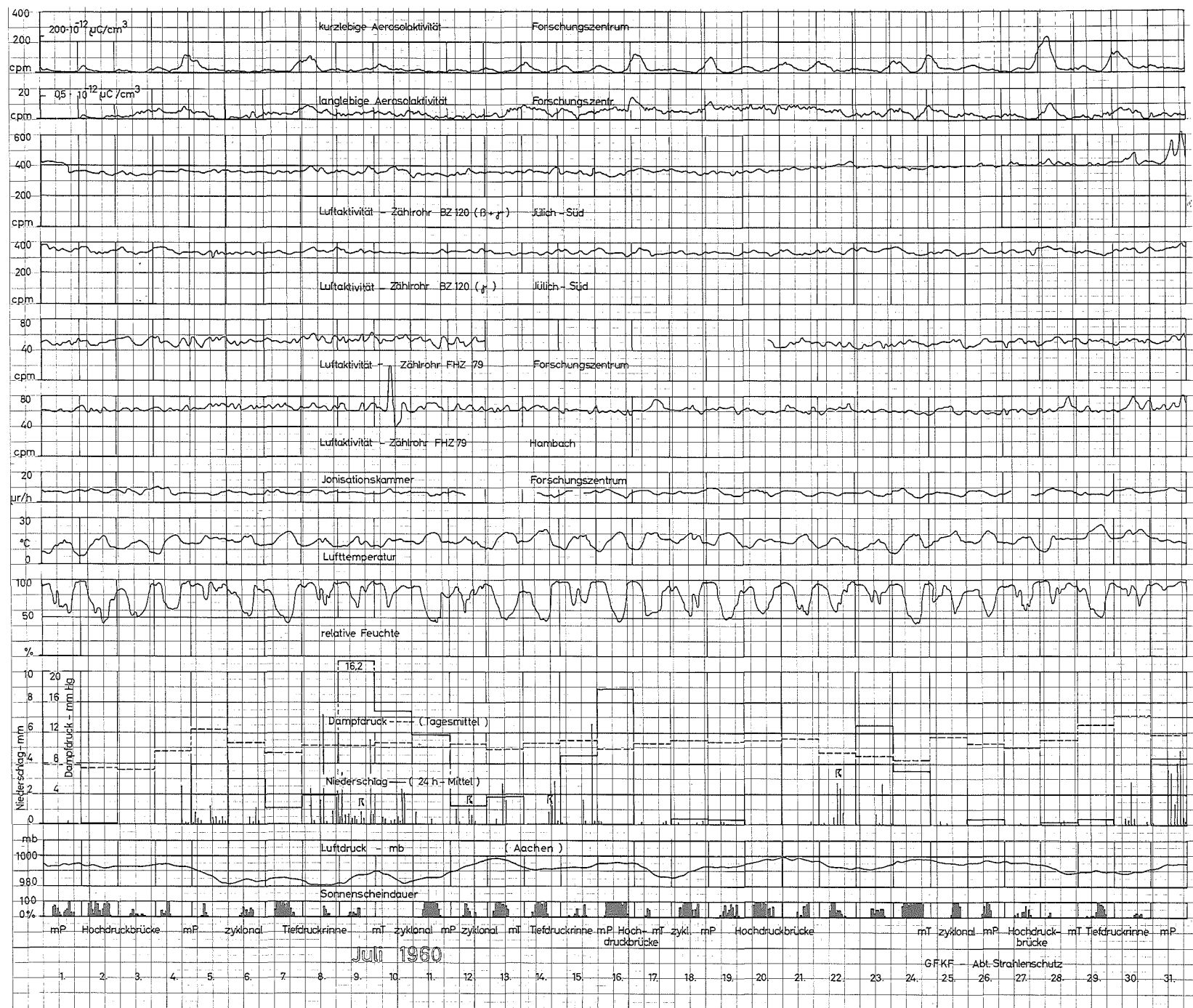


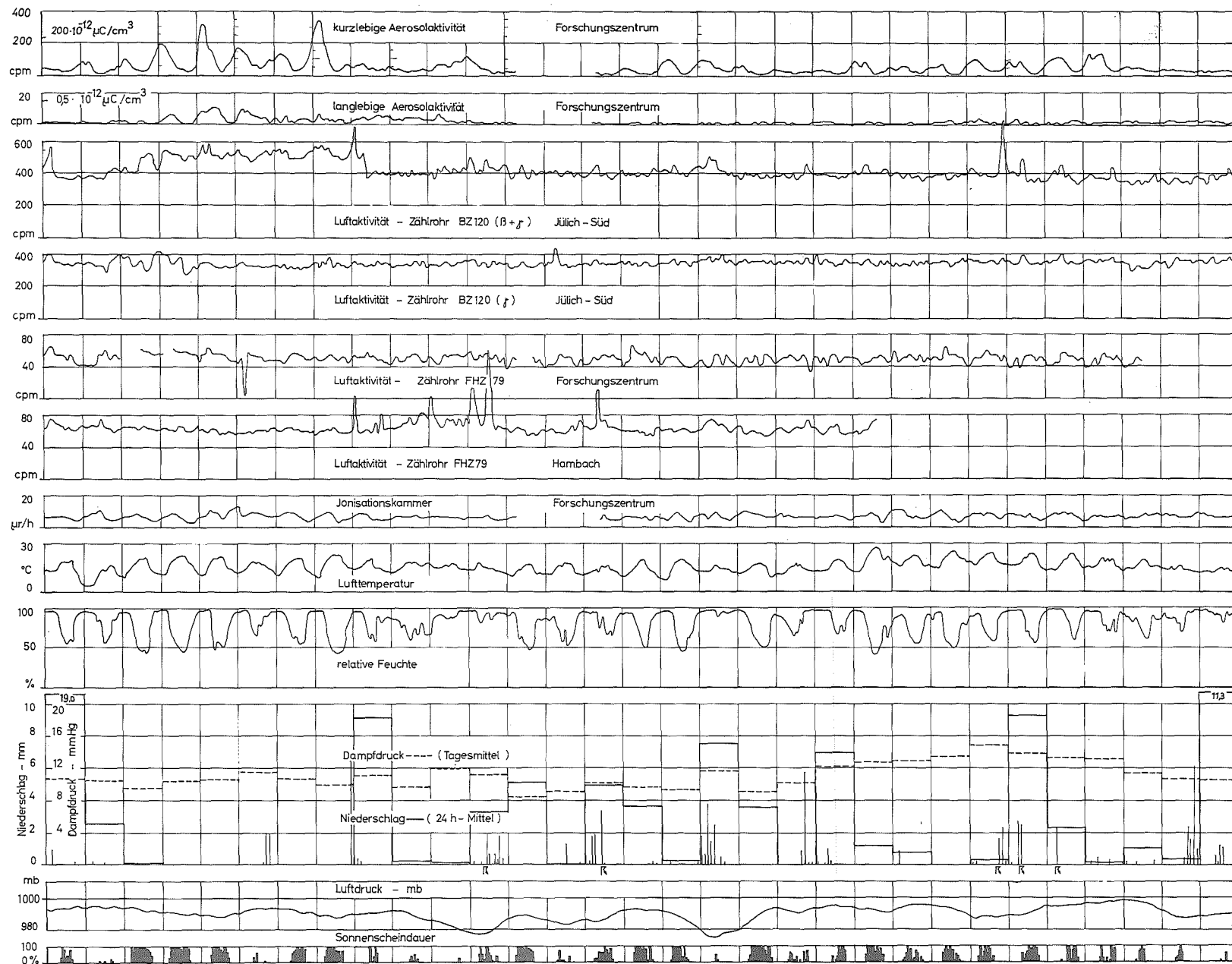
MAI 1960

GFKF Abt. Strahlenschutz







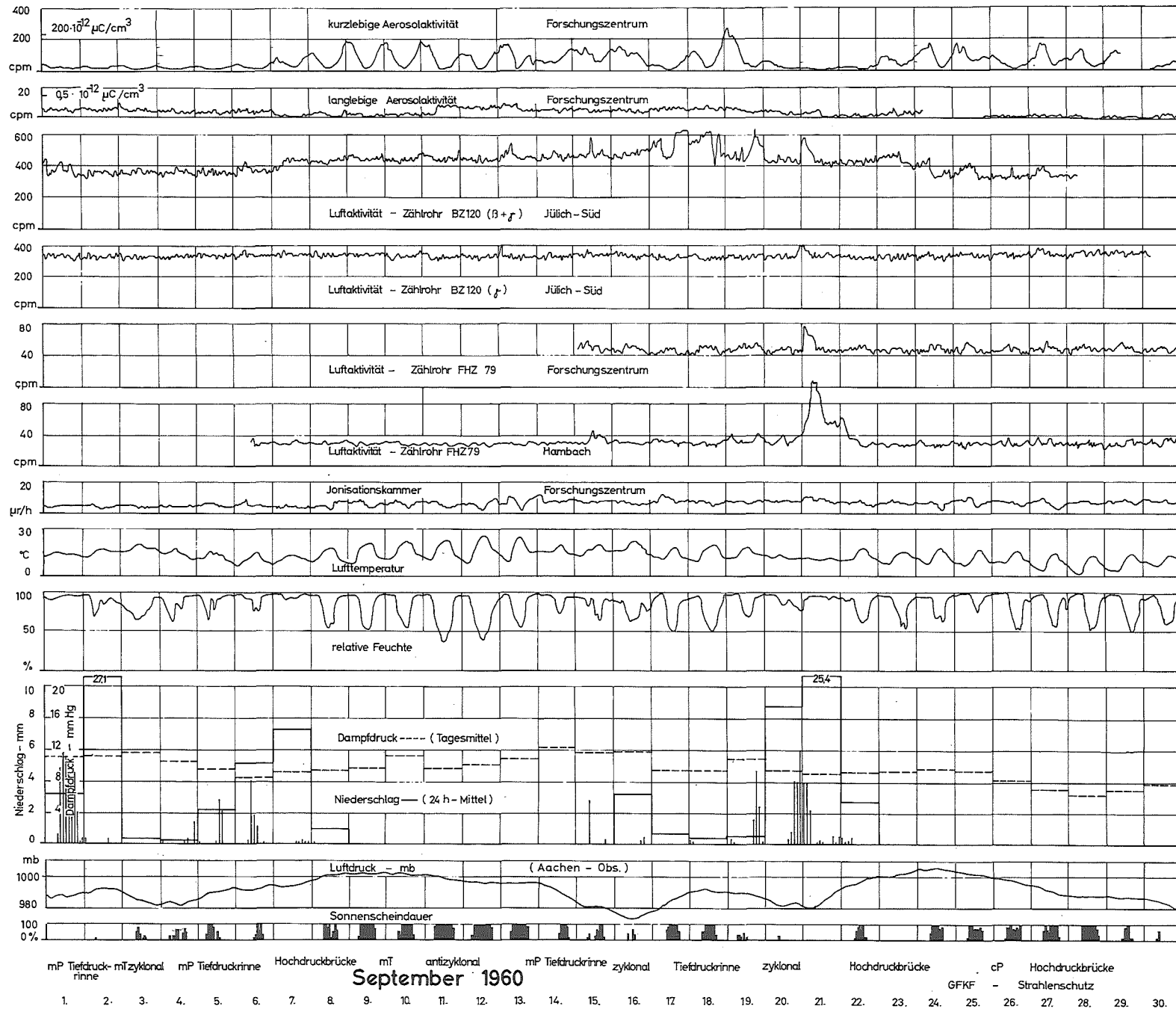


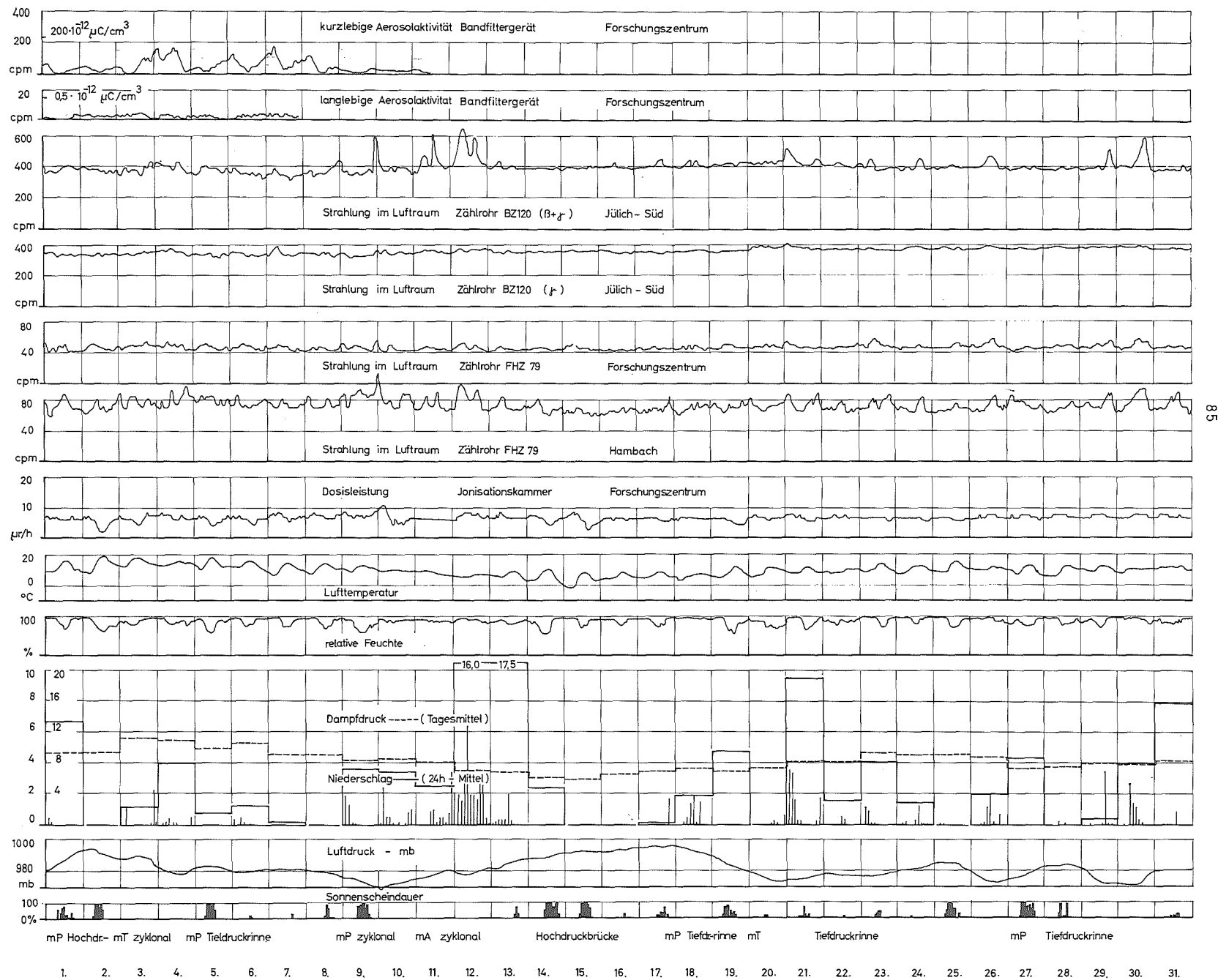
83

August 60

GFKF - Strahlenschutz

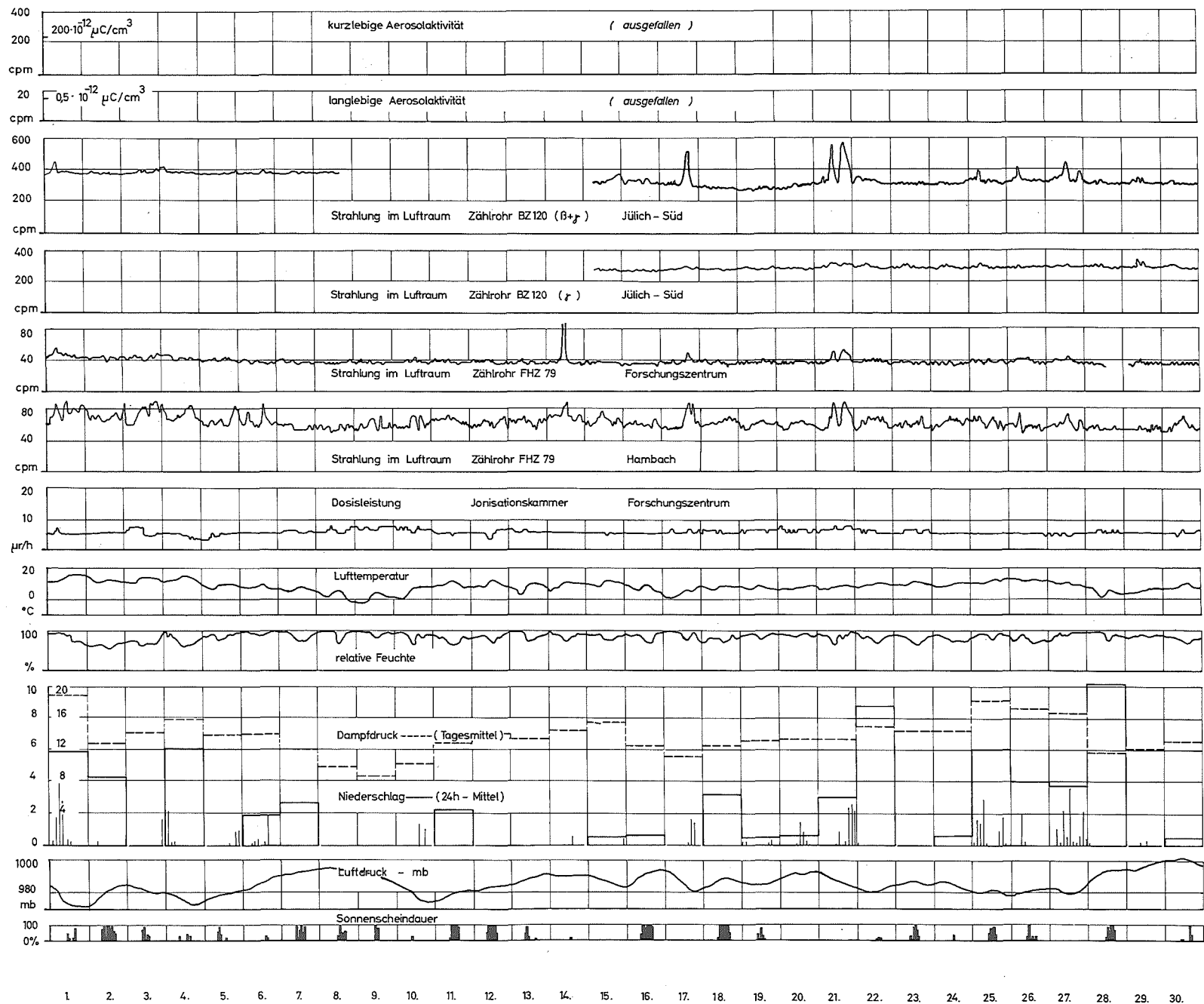
1. 2. 3. 4. 5. 6. 7. 8. 9. 10. 11. 12. 13. 14. 15. 16. 17. 18. 19. 20. 21. 22. 23. 24. 25. 26. 27. 28. 29. 30. 31.





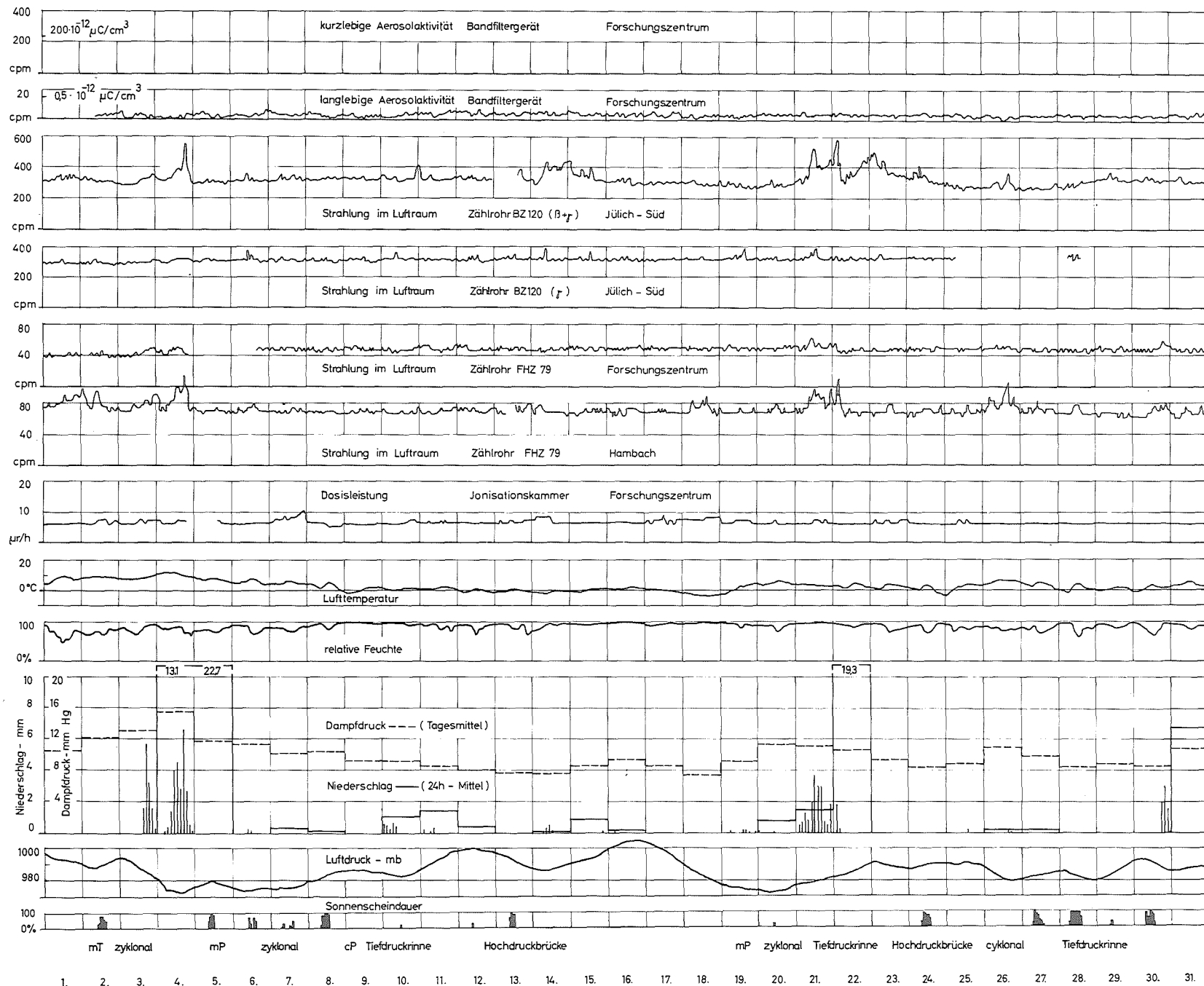
Oktober 1960

Kontinuierliche Luftüberwachung



November 1960

Kontinuierliche Luftüberwachung



Dezember 1960

Kontinuierliche Luftüberwachung  
GFKF - Strahlenschutz

T = Luftmassen, die aus subtropischen Gebieten herangeführt werden.

Aus den meteorologischen Registrierungen im Forschungsgelände ergeben sich für das Jahr 1960 für Temperatur, Luftfeuchte (2 m Höhe) und Niederschlag (1 m Höhe) die Werte in Tab. 16

Tab.16

Temperatur, relative Luftfeuchte und Niederschlagssumme  
Monats- und Jahreswerte 1960

|                             | Jan. | Febr. | März | April | Mai  | Juni | Juli | Aug.  | Sept. | Okt.  | Nov. | Dez. | Jahr  |
|-----------------------------|------|-------|------|-------|------|------|------|-------|-------|-------|------|------|-------|
| Temperatur<br>Mittel in °C  | 2,4  | 3,3   | 6,5  | 8,9   | 13,1 | 16,3 | 15,4 | 16,2  | 13,0  | 10,4  | 7,9  | 2,7  | 9,7   |
| Rel. Feuchte<br>Mittel in % | 85   | 81    | 77   | 73    | 74   | 74   | 78   | 80    | 83    | 87    | 74   | 88   | 80    |
| Niederschlag<br>Summe in mm | 60,5 | 34,9  | 25,9 | 45,0  | 89,1 | 29,6 | 72,6 | 109,2 | 87,3  | 103,8 | 64,3 | 68,9 | 791,1 |

Abb.12 zeigt die Windverteilung nach Richtung und Geschwindigkeit, wie sie in den Monaten Oktober, November und Dezember 1960 gemessen wurde. Es sind in der Darstellung eingetragen die prozentuale Häufigkeit der Windstillen ( $<0,5$  m/sec) und der Windrichtungen (nach einer 16 teiligen Skala), aufgeteilt nach den drei Windstärkestufen  $0,5 - 2,9$  m/sec,  $3 - 9,9$  m/sec und  $>10$  m/sec.

In Abb.13 ist die Windrichtungsverteilung in den Monaten Oktober, November, Dezember 1960 für das Forschungsgelände (ausgezogen) sowie für die Klimastation des DWD in Aachen (gestrichelt) dargestellt. Man erkennt aus der Darstellung deutlich, daß sich der Wind aus der in der freien Atmosphäre herrschenden Hauptwindrichtung um SSW im Forschungsgelände wegen der orographischen Gegebenheiten, je nachdem ob eine mehr südliche oder mehr westliche Komponente vorherrschend ist, in die Windrichtungen aus SE oder WSW aufspaltet.



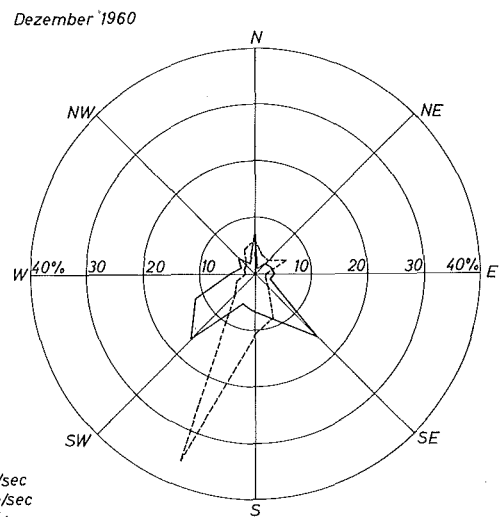
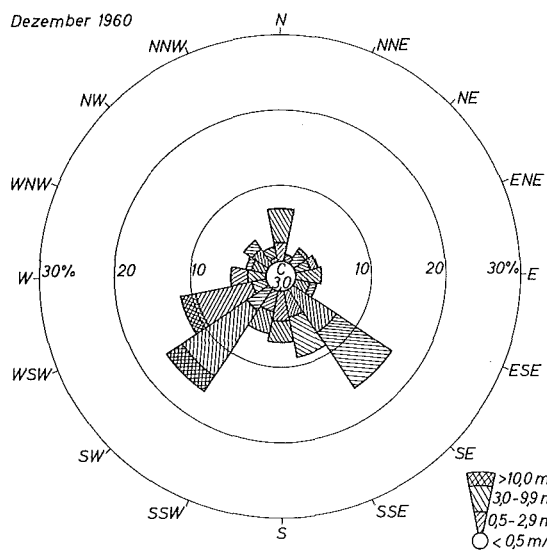
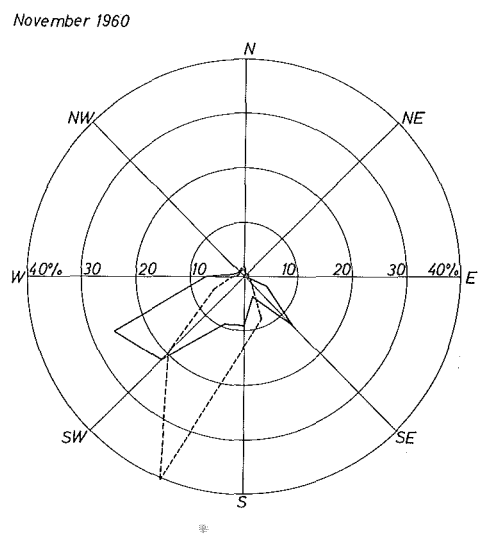
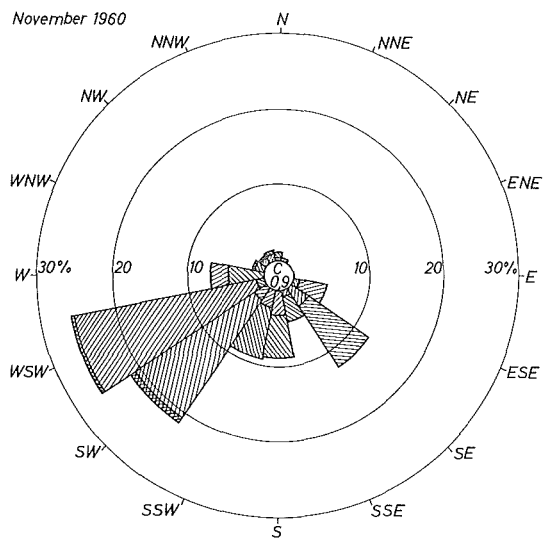
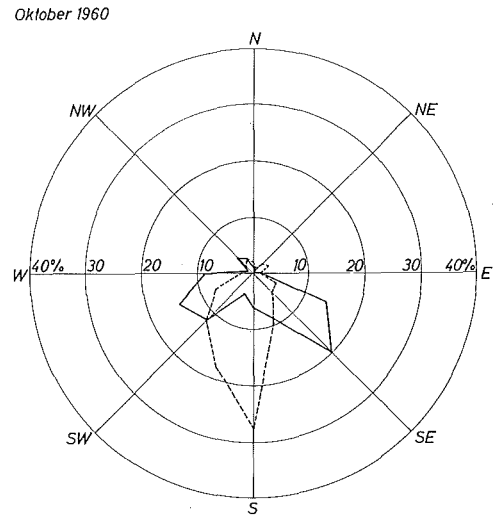
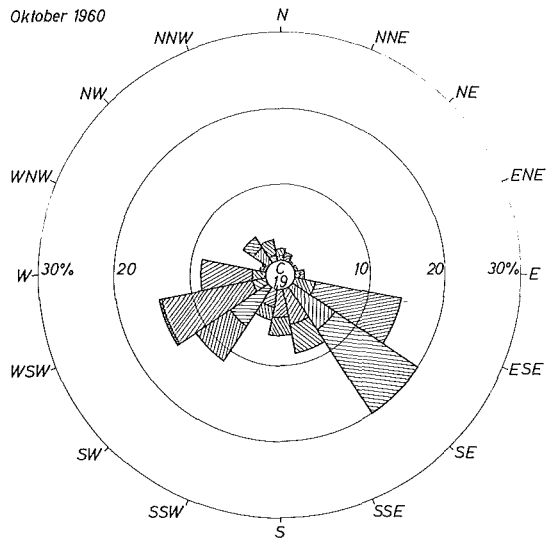


Abb.12. Relative Häufigkeit der Windrichtungen und Windstillen in den Windstärkestufen < 0,5 m/sec (Calmen), 0,5-2,9 m/sec, 3,0-9,9 m/sec, > 10 m/sec.

Abb.13. Relative Häufigkeit der Windrichtungen im Forschungsgebiet Jülich — und in Aachen ----.

## 2.144 Diskussion

Wie empfindlich der Radioaktivitätsgehalt im bodennahen Luftraum auf die jeweiligen Witterungsbedingungen reagiert, war im Jahresbericht 1959 am Beispiel einer länger anhaltenden Hochdruckwetterlage mit andauernder schwacher Luftbewegung gezeigt. Die erste Oktober-Dekade war in diesem Jahr durch einen sehr gleichmäßigen Wetterablauf gekennzeichnet. Wir befanden uns am Südwestrande eines Hochdruckgebietes, dessen Kern in dem betrachteten Zeitraum zwischen Ungarn und der Ostsee pendelte und keine wesentliche Verlagerung zeigte. Die Luftmasse, in der wir uns befanden, war alternde und gealterte Festlandluft mit schwachem Wind um SE und fast ständig wolkenlosem Wetter, so daß die tägliche Ein- und Ausstrahlung ihren ungestörten Verlauf nahmen. Für diese Periode wurde aus der Registrierung der Luftaktivität im Forschungsgelände der mittlere tägliche Gang aus Drei-Stunden-Mitteln errechnet. Die ausgezogene Kurve in Abb.14 zeigt den relativen Verlauf des Gehaltes an natürlichen radioaktiven Substanzen (Radium- und Thorium-Emanation und ihre Zerfallsprodukte) in der bodennahen Luft. Die Darstellung bezieht sich auf Imp/min, wie sie von dem Registriergerät 3 Stunden nach Sammlung auf einem durchlaufenden Filterband kontinuierlich aufgezeichnet wurden. Die gestrichelte Kurve in Abb.14 zeigt den mittleren täglichen Temperaturverlauf der Luft in 2 m Höhe während desselben Zeitraumes. Aus der Darstellung ist deutlich zu erkennen, wie an Strahlungstagen der Gehalt an radioaktiven Substanzen in der Luft eng mit dem Temperaturverlauf im bodennahen Raum gekoppelt ist. Die Ursache für den Zusammenhang ist jedoch natürlich nicht die Temperatur selbst, sondern die mehr oder weniger intensive vertikale Durchmischung (Austausch) von verschiedenen Luftvolumen, die durch die gegebenen Temperaturverhältnisse gesteuert wird.

Während der Nacht zur Zeit der Abkühlung der Luft vom Boden her durch Ausstrahlung nimmt die Radioaktivität der Luft in Bodennähe stetig zu. Die aus dem Boden austretenden radioaktiven Gase sammeln sich an, weil kein Luftaustausch mit der Höhe stattfindet. (Die Luft, die sich vom Boden her abkühlt, wird dichter und somit schwerer als die wärmere Luft in höheren Schichten und bleibt am Boden liegen). Der Gehalt an radioaktiven Substanzen in der bodennahen Luft erreicht sein Maximum gegen Sonnenaufgang zur selben Zeit, zu der die Lufttemperatur ihr Minimum hat. In der Zeit von 06<sup>00</sup> - 09<sup>00</sup> ist die zugestrahlte Energie und die Wärmeabgabe vom

Boden her an die Luft noch nicht sehr groß, die Durchmischung reicht noch nicht hoch und die Konzentration von radioaktiven Partikeln nimmt nur allmählich ab. In der Zeit von 09<sup>00</sup> - 12<sup>00</sup> nimmt die Sonneneinstrahlung und auch die Lufttemperatur rasch zu, jedoch der Raum und somit das Volumen, in dem sich die Luft durchmischt, ist durch die Höhe, bis zu der sich die Inversion nachts ausgebildet hat, begrenzt und infolgedessen ist auch die Abnahme der Radioaktivität in der bodennahen Luft noch nicht so rasch wie die Zunahme der Lufttemperatur. Erst zwischen 12<sup>00</sup> und 15<sup>00</sup>, wenn die Inversion aufgeheizt ist, (erkennbar an der geringer werdenden Zunahme der Lufttemperatur) reicht die Konvektion vom Boden her bis in größere Höhe und gibt dann die Möglichkeit zu einer starken Verdünnung der radioaktiven Substanzen, die sich während der Nacht in der bodennahen Luft gesammelt haben. Interessant und bemerkenswert ist nun, daß das Minimum der Radioaktivität der Luft zeitlich nicht mit dem Maximum der Temperatur und somit des vertikalen Luftaustausches zusammenfällt, sondern etwa 3 Stunden später auftritt (Abb.14). Diese Tatsache läßt sich nur dadurch erklären, daß der Nachschub von radioaktiven Gasen aus dem Boden, also die Exhalation, ebenfalls einen Tagesgang aufweist. Dieses wird verständlich, wenn man die Temperaturverhältnisse im Boden, nahe der Bodenoberfläche in Betracht zieht. Abb.15 zeigt eine typische Situation für den Verlauf der Bodentemperatur bis 30 cm Tiefe an einem Strahlungstage. Man erkennt daraus, daß tagsüber ein Temperaturgefälle von der Bodenoberfläche nach der Tiefe zu und nachts umgekehrt von unten nach oben besteht. Dabei ist das Maximum der Temperatur in der Bodenoberfläche gegenüber dem Maximum der Lufttemperatur nach Sonnenuntergang hin verschoben. Wenn man nun die Diffusion von radioaktiven Emanationen aus dem Erdboden heraus als Thermodiffusion mit austauschähnlichem Charakter ansieht, muß die Exhalation ihr Maximum gegen Morgen und ihr Minimum gegen Abend haben. An reinen Strahlungstagen kommt dieser Effekt verstärkt zur Geltung und erklärt die Verschiebung des Minimums der Radioaktivität der Luft gegenüber dem Maximum des konvektiven Austausches.

Abb.16 gibt den Verlauf der registrierten Impulshöhen pro Minute von Stunde zu Stunde für die betrachtete 1. Oktober-Dekade. Man erkennt daraus, daß je nach den herrschenden Witterungsbedingungen an einzelnen Tagen Schwankungen der natürlichen Radioaktivität der Luft über fast zwei Zehnerpotenzen registriert wurden.

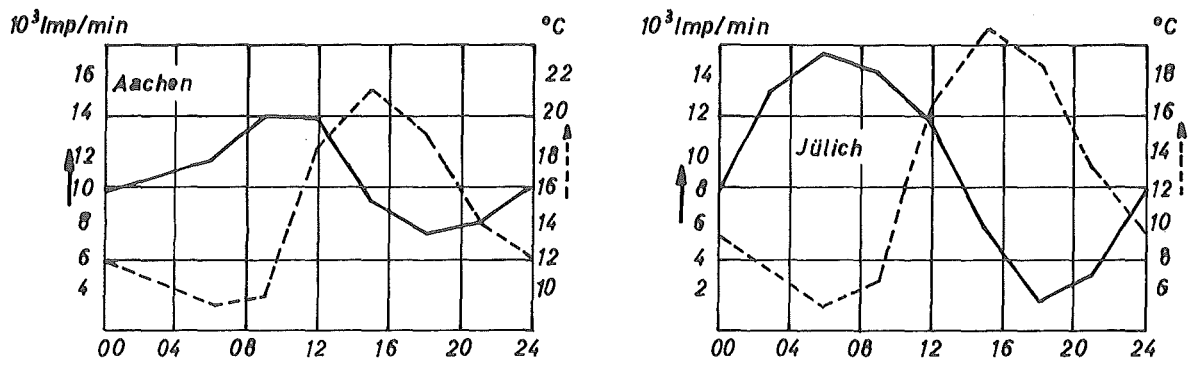


Abb.14. Tagesgang von Lufttemperatur ( $^{\circ}\text{C}$ ) und kurzlebiger Aerosolaktivität (Imp/min) in Aachen und im Reaktorgelände.  
(Mittelwerte der 1. Oktober-Dekade)

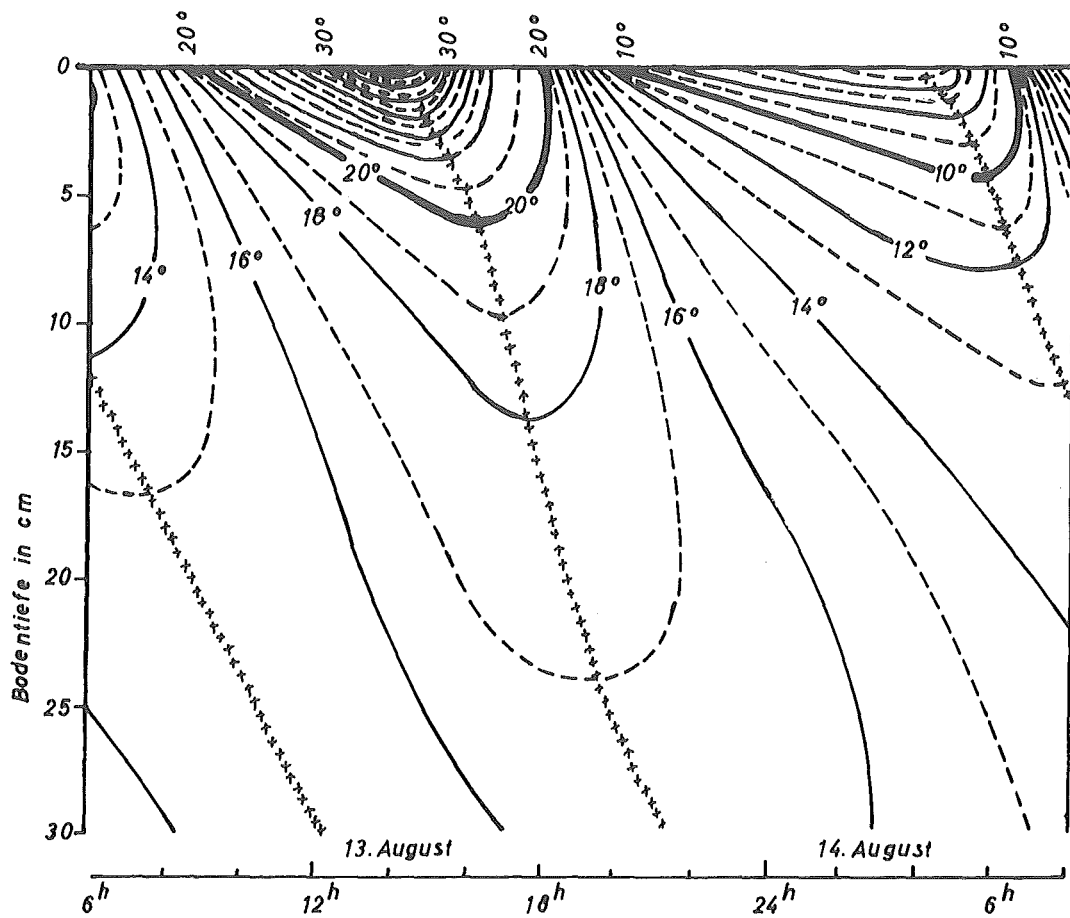


Abb.15. Das Eindringen der täglichen Temperaturwelle in den Boden durch die Wärmeleitung. (entnommen aus Geiger (9))

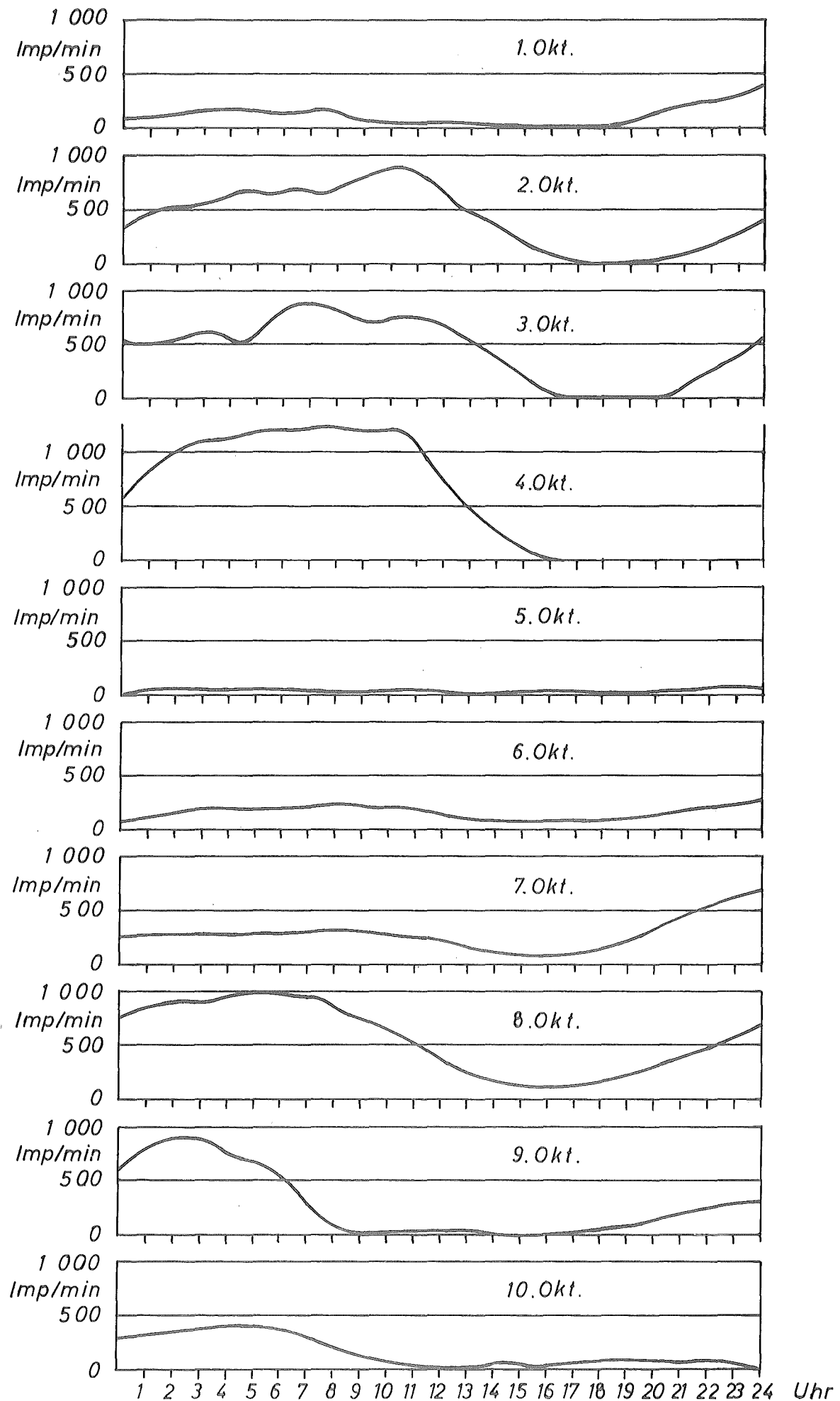


Abb.16. Kurzlebige  $\beta$ -Aktivität der Aerosole in Imp/min  
(1. Oktoberdekade 1959)

Für denselben Zeitraum wurden in gleicher Weise die Registrierungen des Observatoriums Aachen ausgewertet. Die kleinklimatischen Gegebenheiten für die Beobachtungsstation in Aachen sind von denen im Forschungsgelände Jülich wesentlich verschieden. Die Station in Aachen liegt in einer Höhe von 202 m über NN, also 110 m höher als das Gelände in der Rurtalsenke. Außerdem liegt sie auf einem kleinen Hügel und ragt über die unterste Schicht der nächtlichen Inversionen, wo der Temperaturgradient am größten ist, heraus (siehe Abb.17). Diese Situation wirkt sich für den Tagesverlauf der Konzentration der natürlichen Radioaktivität in der bodennahen Luft auch anders aus als im Forschungsgelände bei Jülich, das an der tiefsten Stelle im Gelände liegt. Nachts steigt der Radioaktivitätsgehalt der Luft in Aachen ebenfalls stetig an, die Konzentration von radioaktiven Partikeln nimmt jedoch von Sonnenaufgang an nicht ab, sondern steigt zunächst noch stärker an wegen der verstärkten Nachlieferung durch den Vertikalaustausch von tiefer gelegenen Stellen her. Sie bleibt später während des Vormittages konstant und geht erst nach Auflösung der Inversion, wenn der Vertikalaustausch bis in große Höhen reicht, zurück. Das Minimum stellt sich auch wie im Forschungsgelände gegen Sonnenuntergang ein.

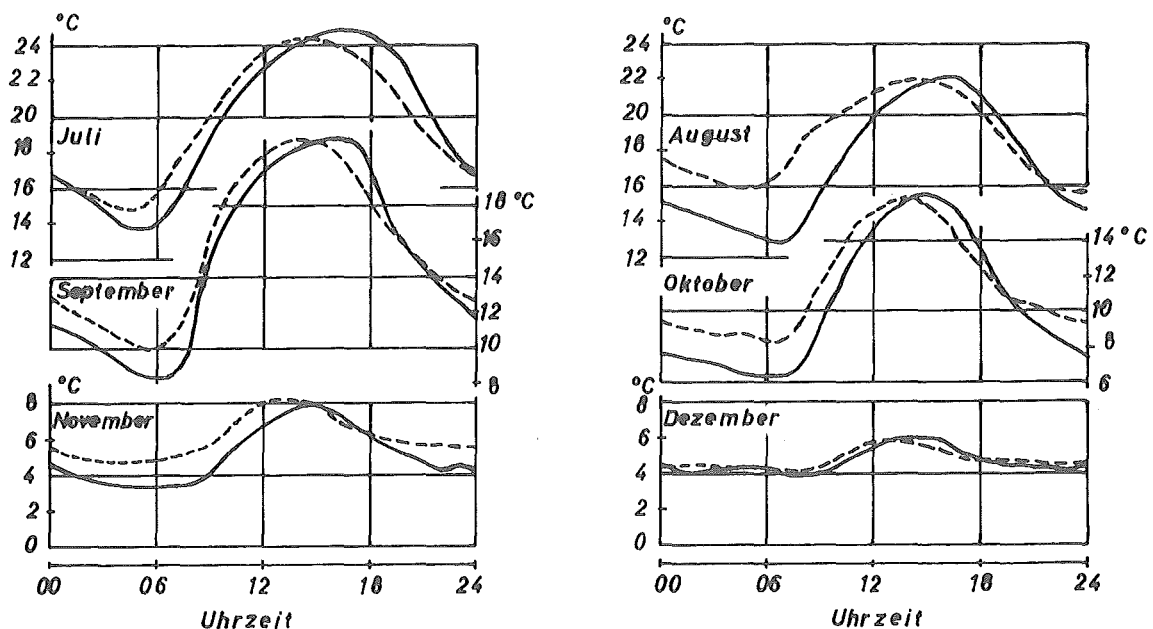
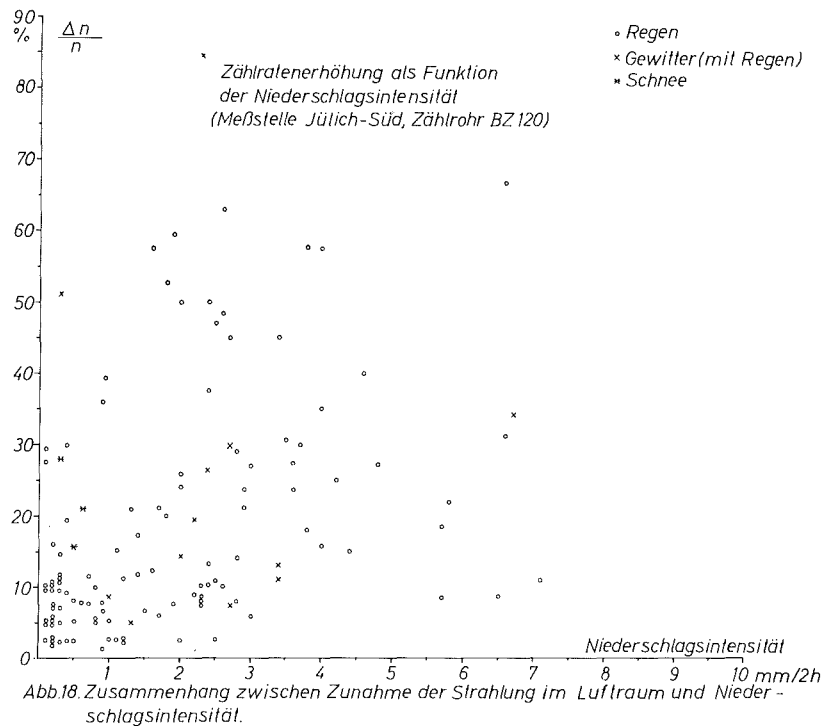


Abb.17. Tagesgang der Temperatur im Reaktorgelände (—) und in Aachen (---) - Monatsmittel

Nach ihrem Absolutwert für den Radioaktivitätsgehalt der Luft lassen sich die beiden Aktivitätskurven in Abb.14 leider nicht vergleichen, weil beim DWD zur Registrierung ein Gerät benutzt wird, welches die Aktivität zur Zeit der Sammlung der Luft sofort mißt und registriert, während im Forschungsgelände ein Gerät benutzt wird, das mit einer zeitlichen Verzögerung von 3 Stunden mißt und somit ein wesentlicher Anteil der natürlichen Radioaktivität der Luft nach dieser Zeitspanne schon abgeklungen ist. Trotzdem geht aus der Darstellung deutlich und eindrucksvoll hervor, wie sehr ein beobachteter radioaktiver Zustand der bodennahen Luft von den kleinklimatischen Gegebenheiten und dem Witterungsablauf abhängig ist. Und man wird derartige Beobachtungen nur dann sinnvoll deuten können, wenn man die Zusammenhänge mit dem Wettergeschehen richtig in diesbezügliche Betrachtungen mit einbezieht.

Zur Untersuchung des Zusammenhanges zwischen Zählratenerhöhung und Niederschlägen wurde das vorliegende Material für die Meßstelle Jülich-Süd (( $\beta+\gamma$ )-Impulsraten, gemessen mit dem Zählrohr BZ 120) von April bis Dezember 1960 ausgewertet. Dabei wurden alle Impulsratenerhöhungen, die sich deutlich über das umgebende Normalniveau erhoben, berücksichtigt und in Abb.18 in Abhängigkeit von der Niederschlagsintensität dargestellt.



Man beobachtet dabei eine verhältnismäßig breite Streuung, die eine exakte zahlenmäßige Zuordnung von Niederschlagsmengen zu bestimmten Zählratenmaxima nicht zuläßt und die sich unter anderem mit den verschiedenen Bildungsmechanismen des Niederschlages und der jeweiligen meteorologischen und radioaktiven Vorgeschichte erklären lassen dürfte.

Im großen und ganzen zeigt sich aber, daß von Ausnahmen abgesehen jede Erhöhung der Strahlung im Luftraum auf Niederschläge zurückgeht, durch die radioaktive Emanationsfolgeprodukte in der Umgebung des Zählrohrs abgelagert werden, wo sie mit einer effektiven Halbwertszeit von ca. 40 min zerfallen.

Besonderes Augenmerk sollte auch Gewittern in der Umgebung ohne Regen am Ort des Zählrohrs gewidmet werden, weil dadurch der Beitrag elektrostatischer Einflüsse auf den Meßeffect beurteilt werden könnte. Das vorliegende statistische Material reicht aber für eine solche Untersuchung noch nicht aus.

Noch deutlicher werden die Verhältnisse, wenn man den Prozentsatz der durch Niederschläge erklärbaren Zählratenerhöhung in Abhängigkeit von der Größe des Zählratenzuwachses angibt (Tab.17). Dabei stellt sich heraus, daß alle untersuchten Fälle mit einer Zählratenerhöhung von über 40 % durch Niederschläge erklärbar sind und auch schon geringere Zunahmen der Zählrate mit einer hohen Wahrscheinlichkeit auf Regenfälle zurückgeführt werden können. Umgekehrt muß jedoch festgestellt werden, daß nicht jeder Regen von einem signifikanten Zuwachs der Zählrate begleitet ist.

Tab.17

Zusammenhang zwischen Erhöhungen der Strahlung im Luftraum  
und Niederschlägen

| Zählratenerhöhung $\frac{\Delta n}{n}$ in %    | 10-20       | 20-30       | 30-40       | >40          |
|--|-------------|-------------|-------------|--------------|
| Zahl der auftretenden Fälle                    | 35          | 20          | 11          | 16           |
| Zahl der durch Niederschläge erklärbaren Fälle | 30<br>(80%) | 18<br>(90%) | 10<br>(91%) | 16<br>(100%) |



## 2.2 Wasserüberwachung

### 2.21 Aktivität des Grundwassers

#### 2.211 Grundlagen

Die Radioaktivität des Grundwassers wird in erster Linie aus natürlichen Strahlenquellen im Erdboden gespeist (vgl. Abb.3). Nach Literaturangaben (41) werden im Quellwasser für Rn und Folgeprodukte Maximalwerte von  $10^5$  pc/l, für Ra 100 pc/l gemessen. Die Aktivitätskonzentration von K-40 im Grundwasser liegt nach eigenen Messungen in der Größenordnung von 1 pc/l.

Nicht gasförmige Emanationsfolgeprodukte sowie radioaktiver Fallout haben im allgemeinen kaum eine Chance in das Grundwasser zu gelangen, da sie bereits von den oberen 2 cm Boden weitgehend ausgefiltert werden, wobei Ionenaustauschprozesse eine gewisse Rolle spielen.

Eine bedeutendere Möglichkeit der Grundwasserkontamination ist durch Versickern radioaktiver Abwässer kerntechnischer Anlagen oder durch unsachgemäß gelagerte radioaktive Abfälle gegeben. In der Jülicher Kernforschungsanlage sind diese Gefahren durch konstruktive und organisatorische Vorkehrungen nach menschlichem Ermessen ausgeschlossen. Trotzdem erfolgt, um alle Kontrollmöglichkeiten auszuschöpfen, eine Überwachung des Grundwassers, weil eine Reihe umliegender Wasserwerke Trinkwasser aus dem Grundwasserstrom entnehmen.

#### 2.212 Methodik

Die Grundwasserproben werden den Peilrohren mit Hilfe einer Pumpe entnommen, nachdem zuvor eine genügende Wassermenge abgepumpt worden ist, um sicherzustellen, daß tatsächlich frisches Wasser aus dem jeweiligen Grundwasserhorizont und nicht Stand- oder Sickerwasser erhalten wird.

Die folgende Beschreibung der Probenaufbereitung und Messung gilt in gleicher Weise für Grund-, Trink- und Oberflächenwasser, sofern im einzelnen keine Einschränkungen angegeben werden. Die Wahl der Verfahren richtet sich nach den Empfindlichkeitsforderungen, die sich aus den in den

gesetzlichen Bestimmungen vorgeschriebenen maximal zulässigen Konzentrationswerten ergeben. Danach muß die Trinkwasserüberwachung bei unbekannter Nuklidverteilung den Nachweis von Aktivitätskonzentrationen bis zu 10 pc/l gestatten. Außerdem kann die Wahl des Nachweisverfahrens speziell bei kurzlebigen Nukliden von der für die Aufbereitung der Meßproben benötigten Zeit abhängig gemacht werden.

Die erforderliche Meßempfindlichkeit kann nach dem heutigen Stande der Meßtechnik mit kontinuierlichen, nicht anreichernden Methoden nicht erzielt werden. Das von KIEFER und MAUSHARDT (42) entwickelte Verfahren der kontinuierlichen Wasserkontrolle mit einem Großflächendurchflußzählrohr eignet sich in der bisher vorliegenden Form aus diesem Grunde nur zur Abwasserüberwachung. Daraus ergibt sich die Notwendigkeit, zeitraubende Anreicherungsverfahren anzuwenden, die bei diskontinuierlicher Probennahme allerdings die Gefahr in sich bergen, daß ein kurzfristiger Aktivitätsschwall nicht gemessen wird. (Im Falle des Grundwassers ist eine kurzzeitige Aktivitätsschwankung aber sehr unwahrscheinlich). Unter den Anreicherungsverfahren stehen Ionenaustausch-, Eindampf- und Mitfällungsverfahren zur Verfügung.

Das Ionenaustauschverfahren ist nur in speziellen Fällen z.B. zur Untersuchung von vollentsalztem Wasser, Regenwasser (49) usw. geeignet. Auch ist hier die Voraussetzung zu machen, daß die Aktivitäten in Ionenform, also nicht molekular, kolloid oder in gröberer Dispersion (z.B. als Staub) vorliegen. Für Grund-, Trink- oder Oberflächenwasser ist das Ionenaustauschverfahren nicht praktikierbar, da der hohe nichtaktive Salzgehalt die Ionenaustauschermasse schnell unbrauchbar macht. Beim Oberflächenwasser ist darüberhinaus noch die Verschmutzungsgefahr und die Beeinflussung des Wirkungsgrades durch Detergentien und Komplexbildner als abträglich anzusehen.

In unserem Routinemeßprogramm der Wasserüberwachung erfolgt die Aufbereitung der Grund-, Trink- und Oberflächenwasserproben nach der Eindampfmethode. Zur Vermeidung von systematischen Fehlern (Spritzverluste beim Eindampfen, Überführungsverluste beim Einbringen in die Meßschalen) wird dabei folgender Arbeitsgang eingehalten: Das Eindampfen der neutralen Wasserproben (1 l) wird unter Oberflächenverdampfern portionsweise in kleinen Eindampfschalen durchgeführt und durch Differenzwägung auf der

Analysenwaage ein bekannter Bruchteil des Rückstandes in die Meßschalen überführt. Beim Vorliegen flüchtiger Substanzen, wie Jod, können die Verluste durch Arbeiten in saurem Medium reduziert werden (44). Dabei empfiehlt sich die Verwendung von Schwefelsäure (45), weil die Sulfate im Gegensatz zu den Chloriden und Nitraten nicht hygroskopisch sind, was besonders hinsichtlich der Wägung und Selbstabsorption von Bedeutung ist.

Die Ausmessung der Proben erfolgt 4 Tage nach Probennahme in einem Probenwechsler mit einem Methandurchflußzählrohr als Detektor (vgl. 2.132). Die langlebige spezifische Aktivität des untersuchten Wassers in pc/l ergibt sich nach den Formeln

$$A_{\alpha} = \frac{0,45}{V} \cdot \frac{R}{E} \cdot f_{\beta} (n_{\alpha} - n_{\alpha}^0) \quad (29)$$

$$A_{\beta} = \frac{0,45}{V} \cdot \frac{R}{E} \cdot f_{\beta} \left\{ (n_{\alpha+\beta} - n_{\alpha+\beta}^0) - (n_{\alpha} - n_{\alpha}^0) \right\} \quad (30)$$

$n_{\alpha} - n_{\alpha}^0$  = Nettozählrate in Imp/min im  $\alpha$ -Plateau

$n_{\alpha+\beta} - n_{\alpha+\beta}^0$  = Nettozählrate in Imp/min im  $\beta$ -Plateau

$f_{\alpha}, f_{\beta}$  = Korrekturfaktoren bzgl. Raumwinkel und Selbstabsorption

$V$  = Volumen der eingedampften Wasserprobe in l

$R$  = Eindampfrückstand in mg

$E$  = Einwaage in Probenschälchen in mg

Die Eichung des Zählrohres mit KCl ist bei den Grund-, Trink- und Oberflächenwässern besonders begründet, weil ein beträchtlicher Teil der Wasseraktivität auf K-40 zurückzuführen ist. Da die Kalium-Aktivität als biologisch unbedeutend angesehen werden kann, wird sie nach einem flammenphotometrischen Verfahren getrennt bestimmt und von der Gesamtaktivität abgezogen. Die Differenz wird als Restaktivität angegeben.

Das oben beschriebene Eindampfverfahren gestattet aufgrund des langwierigen Anreicherungsprozesses (das Eindampfen dauert mehrere Stunden) nur die Erfassung der langlebigen  $\alpha$ - und  $\beta$ -Aktivitäten. Um die kurzlebige Aktivität zu messen, müssen Methoden angewendet werden, die in relativ kurzer

Zeit das Meßpräparat liefern. Eine geeignete Methode stellt das von KIEFER und MAUSHARDT (46) beschriebene Mitfällungsverfahren dar, bei dem das Meßpräparat bei raschem Arbeiten in etwa 30 min vorliegt. (Die effektive Halbwertszeit der Rn-Folgeprodukte beträgt z.B. etwa 40 min).

Die Entnahme der Grund-, Trink- und Oberflächenwasserproben geschieht in Polyäthylenflaschen, die so weit gefüllt werden, daß sie keine Luft mehr enthalten, so daß die ursprüngliche Rn-Konzentration in der Wasserprobe erhalten bleibt.

Bei der Probenaufbereitung im Labor wird folgendermaßen verfahren: Ein bekanntes Volumen ( 1 l) der Wasserprobe wird mit  $\text{Fe}^{3+}$ - und  $\text{PO}_4^{3-}$ -Ionen versetzt und die Lösung alkalisch gemacht. Es bildet sich ein sehr voluminöser Niederschlag mit großer Oberfläche, der aus Eisenhydroxyd, Eisenphosphat und Calciumphosphat besteht. Zur weiteren Vergrößerung der Oberfläche wird noch Aktivkohle zugegeben. Der Niederschlag reißt die im Wasser vorhandenen radioaktiven Partikeln vermittelt seiner großen Adsorptionsfähigkeit mit.

Der Wirkungsgrad des Mitfällungsverfahrens beträgt für die meisten Nuklide über 80 %, für J, Cs, Ru, u.a. ist die Ausbeute jedoch u.U. wesentlich geringer, kann aber durch geeignete Maßnahmen (Trägerzusatz, Stabilisierung mit Natriumthiosulfat, Verwendung von Filter-Cel) verbessert werden. Für Rn-Folgeprodukte ist etwa mit einem Wirkungsgrad von 80 % zu rechnen. Das Verfahren gestattet also im allgemeinen die Messung der Aktivitätskonzentration des Wassers hinreichend genau bzw. hinsichtlich kurzlebiger Nuklide hinreichend schnell.

Die Aktivitätsmessung nehmen wir an einem aliquoten Teil des getrockneten Niederschlags in einem Antikoinzidenzmeßplatz (Tracerlab) vor. Die Impulsraten liegen bei Trinkwasser etwa beim 100-fachen und bei Oberflächenwasser etwa beim 5 - 10-fachen des Nulleffektes; wir können also selbst bei den schwachen Aktivitäten im Oberflächenwasser eine Abklingkurve aufnehmen.

Die Apparatur wird mit KCl-Präparaten geeicht.

Tab.18

| Langlebige $\alpha$ -und $\beta$ -Aktivität des Grundwassers |           |          |                |               |                    |
|--|-----------|----------|----------------|---------------|--------------------|
| in pc/l  |           |          |                |               |                    |
| Probennahmestelle  | Tiefe (m) | Datum    | $\alpha$ -Akt. | $\beta$ -Akt. | Rest $\beta$ -Akt. |
| Peilrohr 1   | 5,2       | 13. 7.60 |                | 1,3           | 1,0                |
|  |           | 4.11.60  |                | 4             | $\leq 3$           |
| Peilrohr 2   | 10,6      | 13. 7.60 |                | 5             | $\leq 3$           |
| Peilrohr 14  | 14,5      | 13. 7.60 |                | 3             | $\leq 3$           |
|  |           | 4.11.60  |                | 4             | $\leq 3$           |
| Peilrohr 15  | 10,7      | 4.11.60  |                | 3             | $\leq 3$           |
| Peilrohr 16  | 10,4      | 13. 7.60 |                | 8             | 5                  |
|  |           | 4.11.60  |                | 8             | 7                  |
| Peilrohr 19/1  | 4,0       | 13. 1.60 |                | 6             | 4                  |
|  |           | 10. 2.60 |                | 3             | $\leq 3$           |
|  |           | 9. 3.60  |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 28. 3.60 | 2,3            |               |                    |
|  |           | 12. 4.60 |                | 3             | $\leq 3$           |
|  |           | 11. 5.60 |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 13. 7.60 |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 4.11.60  |                | 8             | 6                  |
| Peilrohr 19/4  | 58,0      | 13. 1.60 |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 10. 2.60 |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 9. 3.60  |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 12. 4.60 |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 11. 5.60 |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 13. 7.60 |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 4.11.60  |                | 4             | 3                  |
| Peilrohr 20  | 7,6       | 13. 1.60 | 1,9            | 4             | 3                  |
|  |           | 10. 2.60 | $\leq 0,2$     | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 9. 3.60  |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 12. 4.60 |                | 3             | $\leq 3$           |
|  |           | 25. 4.60 | 3,4            |               |                    |
|  |           | 11. 5.60 |                | 6             | 5                  |
|  |           | 30. 5.60 | 7,2            |               |                    |
|  |           | 21. 6.60 | 3,6            |               |                    |
|  |           | 13. 7.60 |                | 5             | 4                  |
|  |           | 26. 7.60 | 14,5           |               |                    |
|  |           | 22. 8.60 | 1,0            |               |                    |
|  |           | 4.11.60  |                | 4             | $\leq 3$           |
|  |           | 7.11.60  | 0,2            |               |                    |
| Peilrohr 159/1   | 15,7      | 13. 1.60 |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 10. 2.60 |                | 6             | $\leq 3$           |
|  |           | 9. 3.60  |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 12. 4.60 |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 11. 5.60 |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 13. 7.60 |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 4.11.60  |                | 5             | $\leq 3$           |
| Peilrohr 159/2   | 34,1      | 13. 1.60 |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 10. 2.60 |                | 3             | $\leq 3$           |
|  |           | 9. 3.60  |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 12. 4.60 |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 11. 5.60 |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 13. 7.60 |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |
|  |           | 4.11.60  |                | 4             | $\leq 3$           |
| Peilrohr 160   | 22,7      | 13. 7.60 |                | $\leq 3$      | $\leq 3$           |

### 2.213 Meßergebnisse

In Tab.18 sind die Gesamt- $\alpha$ - und - $\beta$ -Aktivität und die Rest- $\beta$ -Aktivität der Grundwasserproben in pc/l angegeben. Da die Ermittlung der  $\alpha$ -Aktivität nicht zum Routineprogramm gehört, liegen nur einige  $\alpha$ -Meßergebnisse vor.

### 2.214 Diskussion

Unter "Wasseraktivität" schlechthin soll im folgenden stets die langlebige Aktivitätskonzentration des Wassers verstanden werden.

Die geringen Aktivitätskonzentrationen des Grundwassers liegen an der Grenze der Meßempfindlichkeit der angewendeten Methode. Demgemäß sind die statistischen Schwankungen verhältnismäßig groß. Nach Formel (25) erhält man für die im Mittel gemessenen Netto-Impulsraten folgende statistische Fehler: Für die  $\alpha$ -Aktivität ergibt sich bei einer Meßzeit von 15 h ein Fehler von 30 - 40 %, während der Fehler der  $\beta$ -Messung bei der üblichen Impulsvorwahl von 1000 Impulsen im allgemeinen zwischen 40 und 80 % liegt. Beträgt der Zählfehler etwa 75 %, sehen wir die Grenze der Meßempfindlichkeit als gegeben an. Ein systematischer Fehler ergibt sich, besonders bei der  $\alpha$ -Messung, noch infolge der Ungenauigkeit des Korrekturfaktors hinsichtlich der Selbstabsorption.

Die relativ großen Fehler sind trotzdem vom Standpunkt der Routineüberwachung unerheblich, da im allgemeinen nicht einmal die Gesamtaktivität die maximal zulässige Trinkwasserkonzentration für unbekannte Nuklide erreicht. (Die in der Strahlenschutzverordnung aufgeführten maximal zulässigen Konzentrationen für nicht analysierte Nuklidgemische im Wasser betragen für Abwasser 100, für Trinkwasser 10 pc/l). Darüberhinaus stammt der größte Teil der langlebigen  $\beta$ -Aktivität von dem völlig ungefährlichen natürlichen radioaktiven Nuklid K-40.

Die Meßergebnisse schwanken erwartungsgemäß nur im Rahmen des statistischen Fehlers, d.h. zur Aktivität des Fallout besteht keine Korrelation, weil die Fallout-Aktivitäten in der Bodenoberfläche durch Ionenaustauschprozesse weitgehend ausgefiltert werden und mit dem Grundwasser nicht in Berührung kommen.

Da es sich bei der Aktivitätskonzentration des Grundwassers um Nuklide natürlicher Herkunft handelt, liegen  $\alpha$ -Aktivität und Rest- $\beta$ -Aktivität in derselben Größenordnung.

## 2.22 Aktivität des Trink- und Betriebswassers

### 2.221 Grundlagen

Trinkwässer können grundsätzlich aus dem Grundwasser oder aus dem Oberflächenwasser entnommen werden. Da uferfiltrierte Trinkwässer im Jülicher Raum nicht vorkommen, gelten für die von uns untersuchten Trinkwässer die unter 2.211 für Grundwasser angeführten physikalischen Gegebenheiten.

### 2.222 Methodik

Die Probennahme der Trink- und Betriebswässer erfolgt in den in Tab.2 aufgezählten Wasserwerken und Betrieben. Dabei werden chemisch unbehandelte (nicht gechlorte) Rohwasserproben in Kunststoff-Flaschen eingeholt, nachdem zuvor eine genügende Wassermenge ablaufen gelassen worden ist, um das Standwasser aus den Rohrleitungen zu entfernen.

Die Aufbereitung und Ausmessung der Trinkwasserproben erfolgt nach dem unter 2.212 beschriebenen Verfahren.

### 2.223 Meßergebnisse

Als Ergebnisse der Trink- und Betriebswassermessungen sind in Tab.19 die langlebige  $\alpha$ -,  $\beta$ - und Rest- $\beta$ -Aktivität in pc/l angegeben. Die  $\alpha$ -Aktivität wurde routinemäßig nur bei den Wasserwerken Jülich und Hambach bestimmt. Außerdem liegen Einzelmeßwerte vom Schwimmbad Jülich vor.

Die Messung der kurzlebigen  $\beta$ -Aktivität wurde ab November 1960 als Sondermessung in unser Überwachungsprogramm aufgenommen. Tab.20 enthält die Meßergebnisse des kurzlebigen Anteils der  $\beta$ -Aktivität von Trinkwasserproben.

Tab.19

| Langlebige $\alpha$ - und $\beta$ -Aktivität<br>des Trink- und Betriebswassers<br>in pc/l |          |                |               |           |
|---|----------|----------------|---------------|-----------|
| Probennahmestelle   | Datum    | $\alpha$ -Akt. | $\beta$ -Akt. | Rest-Akt. |
| Wasserwerk Jülich   | 13. 1.60 |                | < 3           | < 3       |
|   | 26. 1.60 |                | < 3           | < 3       |
|   | 10. 2.60 |                | < 3           | < 3       |
|   | 24. 2.60 |                | < 3           | < 3       |
|   | 9. 3.60  |                | < 3           | < 3       |
|   | 23. 3.60 |                | 3             | < 3       |
|   | 12. 4.60 |                | < 3           | < 3       |
|   | 27. 4.60 |                | 4             | 3         |
|   | 11. 5.60 |                | 4             | 3         |
|   | 24. 5.60 |                | 4             | 3         |
|   | 1. 6.60  |                | 3             | < 3       |
|   | 21. 6.60 |                | < 3           | < 3       |
|   | 19. 7.60 |                | < 3           | < 3       |
|   | 19. 9.60 |                | 16            | 11        |
|   | 17.10.60 | 0,8            | 4             | < 3       |
|   | 21.11.60 |                | < 3           | < 3       |
|   | 24.11.60 | 0,5            |               |           |
|   | 20.12.60 |                | < 3           | < 3       |
| Wasserwerk Hambach  | 11. 1.60 | 0,3            |               |           |
|   | 13. 1.60 |                | < 3           | < 3       |
|   | 26. 1.60 |                | < 3           | < 3       |
|   | 10. 2.60 |                | < 3           | < 3       |
|   | 11. 2.60 | 0,3            |               |           |
|   | 24. 2.60 |                | < 3           | < 3       |
|   | 9. 3.60  |                | < 3           | < 3       |
|   | 23. 3.60 |                | 4             | < 3       |
|   | 12. 4.60 |                | < 3           | < 3       |
|   | 27. 4.60 |                | 5             | < 3       |
|   | 29. 4.60 | 0,5            |               |           |
|   | 24. 5.60 | 0,6            | < 3           | < 3       |
|   | 1. 6.60  |                | 4             | < 3       |
|   | 8. 6.60  | 0,4            |               |           |
|   | 21. 6.60 |                | 3             | < 3       |
|   | 18. 7.60 | 1,0            |               |           |
|   | 19. 7.60 |                | 3             | < 3       |
|   | 9. 8.60  | 0,4            |               |           |
|   | 6. 9.60  | < 0,2          |               |           |
|   | 19. 9.60 |                | 15            | 11        |
| Schwimmbad Jülich   | 17.10.60 |                | 4             | < 3       |
|   | 19.10.60 | 0,7            |               |           |
|   | 21.11.60 | 0,3            | < 3           | < 3       |
|   | 25.11.60 | 0,3            |               |           |
|   | 20.12.60 |                | 3             | < 3       |
|   | 24. 5.60 |                | 4             | < 3       |
|   | 1. 6.60  |                | 4             | < 3       |
|   | 21. 6.60 |                | 4             | < 3       |
|   | 19. 7.60 |                | 4             | < 3       |
|   | 19. 9.60 |                | 4             | < 3       |
|   | 17.10.60 | 0,8            | 4             | < 3       |



Tab.19 Fortsetzung

| Probennahmestelle            | Datum    | $\alpha$ -Akt. | $\beta$ -Akt. | Rest-Akt. |
|------------------------------|----------|----------------|---------------|-----------|
| Schwimmbad Jülich            | 21.11.60 | 0,2            | < 3           | < 3       |
|                              | 2.12.60  |                |               |           |
|                              | 20.12.60 |                | < 3           | < 3       |
| Wasserw. Aldenhoven Br.1     | 24. 2.60 |                | < 3           | < 3       |
| Wasserw. Aldenhoven Br.2     | 5. 9.60  |                | 5             | < 3       |
| Wasserw. Aldenhoven Br.4     | 24. 2.60 |                | < 3           | < 3       |
|                              | 5. 9.60  |                | 3             | < 3       |
| Wasserwerk Titz              | 24. 2.60 |                | 3             | < 3       |
|                              | 5. 9.60  |                | 5             | < 3       |
| Wasserwerk                   | 24. 2.60 |                | < 3           | < 3       |
| Hasselsweiler                | 5. 9.60  |                | 14            | 13        |
| Wasserwerk Güsten            | 24. 2.60 |                | 5             | < 3       |
|                              | 5. 9.60  |                | 15            | 12        |
| Wasserw. Dirmerzheim         | 24. 2.60 |                | 3             | < 3       |
| Wasserwerk Türnich           | 24. 2.60 |                | < 3           | < 3       |
|                              | 5. 9.60  |                | 5             | 4         |
| Wasserwerk Sindorf           | 24. 2.60 |                | 3             | < 3       |
|                              | 5. 9.60  |                | 3             | < 3       |
| Wasserwerk Glesch            | 24. 2.60 |                | < 3           | < 3       |
|                              | 5. 9.60  |                | 3             | < 3       |
| Molkerei Mersch              | 24. 2.60 |                | 3             | < 3       |
|                              | 5. 9.60  |                | 10            | < 3       |
| Zuckerfabrik Ameln           | 24. 2.60 |                | < 3           | < 3       |
| Fa. Schoeller, Düren         | 14. 1.60 |                | 6             | 4         |
|                              | 11. 2.60 |                | 3             | < 3       |
|                              | 10. 3.60 |                | 5             | 3         |
|                              | 21. 4.60 |                | 4             | < 3       |
|                              | 25. 5.60 |                | 3             | < 3       |
| Fa. Turaphot, Düren          | 14. 1.60 |                | 3             | < 3       |
|                              | 11. 2.60 |                | < 3           | < 3       |
|                              | 10. 3.60 |                | 5             | 3         |
|                              | 21. 4.60 |                | 3             | < 3       |
|                              | 25. 5.60 |                | 5             | < 3       |
| Fa. Turaphot,<br>Mariaweiler | 14. 1.60 |                | 7             | 4         |
|                              | 11. 2.60 |                | < 3           | < 3       |
|                              | 10. 3.60 |                | 5             | < 3       |
|                              | 21. 4.60 |                | 5             | < 3       |
|                              | 25. 5.60 |                | 8             | < 3       |

Tab.20

| Kurzlebige $\beta$ -Aktivität von Trinkwasser in pc/l |            |                    |
|---|------------|--------------------|
| Entnahmestelle  | Datum      | $\beta$ -Aktivität |
| Wasserwerk Jülich                                     | 24.11.1960 | 510                |
|   | 15.12.1960 | 780                |

## 2.224 Diskussion

Für die Beurteilung der statistischen und systematischen Fehler gelten die unter 2.214 gemachten Ausführungen.

Die Rest- $\beta$ -Aktivität liegt im allgemeinen unterhalb der Meßgrenze. Unter der Voraussetzung, daß die im Berichtsjahr gemessene Rest- $\beta$ -Aktivitäten natürlichen Ursprungs waren, d.h. im wesentlichen der Uran- und Thorium-Reihe entstammten, geben die  $\alpha$ -Werte einen Hinweis auf die tatsächlichen Größenordnungen der  $\beta$ -Aktivitäten. Die kurzlebige Aktivitätskonzentration im Trinkwasser übersteigt den langlebigen Anteil im allgemeinen um 2 Größenordnungen (vgl.(47)).

## 2.23 Aktivität des Oberflächenwassers

### 2.231 Grundlagen

Aus der schematischen Darstellung Abb.3 ist die Herkunft der Aktivitäten im Oberflächenwasser zu ersehen.

Bei den im Oberflächenwasser vorliegenden natürlichen Nukliden handelt es sich um Rn, Tn, und Folgeprodukte, die mit dem Quellwasser aus dem Boden kommen sowie langlebige aus dem Boden herausgelöste Nuklide wie U-238, Th-232 und K-40. HEALY (41) gibt folgende Aktivitätskonzentrationen im Flußwasser an: Rn und Folgeprodukte 10 pc/l (in Quellwasser bis  $10^5$  pc/l), U und Th 0,1 bis 1 pc/l. Die K-40-Konzentration ist von Gewässer zu Gewässer sehr verschieden und kann bei Vorliegen von kaliumhaltigen Industrieabwässern hohe Werte annehmen. In der Rur haben wir K-40-Konzentrationen von durchschnittlich 5 pc/l gemessen.

Daneben treten Spaltprodukte aus Atombombenversuchen im Oberflächenwasser auf, die durch radioaktive Niederschläge in das Flußwasser gelangen. Besonders unübersichtliche Kontaminationsquellen stellen jedoch die Abwässer kerntechnischer Anlagen dar, in denen alle möglichen künstlich radioaktiven Nuklide enthalten sein können.

Die Aktivitäten im Wasser liegen teilweise in Form echter Lösungen, teilweise als Kolloide und gröbere Dispersionen vor. Nach Einleiten radioakti-

ver Abwässer besteht häufig die Tendenz der Anlagerung an anorganische Partikel z.B. Ton oder der Aufnahme durch biologische Objekte (Plankton, Wassertiere). Damit verbunden ist eine weitgehende Selbstreinigung des Wassers durch Absetzen organischer und anorganischer Partikeln über biologische und nicht biologische Mechanismen zu beobachten, was zu einer Anreicherung der Aktivitäten im Bodenschlamm der Gewässer führen kann.

### 2.32 Methodik

Infolge der oben geschilderten Verhältnisse ist der Probennahme von Oberflächenwasser besonderes Augenmerk zu schenken. Die Reproduzierbarkeit der Messung versuchen wir dadurch zu gewährleisten, daß wir die Wasserproben an festgelegten Meßstellen nach Möglichkeit in der Mitte des Gewässers entnehmen.

Die Aufbereitung und Ausmessung der Proben erfolgt nach dem unter 2.212 beschriebenen Verfahren.

### 2.233 Meßergebnisse

Als Meßergebnisse sind in Tab.21 die langlebige  $\alpha$ - und  $\beta$ -Aktivität und die Rest- $\beta$ -Aktivität der Oberflächenwässer in der Einheit pc/l angegeben.

In Tab.22 sind Meßergebnisse der kurzlebigen  $\beta$ -Aktivität von Oberflächenwasser zusammengestellt. Der Mittelwert liegt bei 26 pc/l.

### 2.234 Diskussion

Die kurzlebige Rest- $\beta$ -Aktivität im Oberflächenwasser erwies sich im Mittel etwa als 5 - 10 mal so groß wie die langlebige Rest- $\beta$ -Aktivität (vgl. Tab.21 u. 22), war damit aber noch um gut eine Größenordnung geringer als die von uns gemessene Trinkwasseraktivität. Dies ist auf die Abnahme der Rn-Konzentration im Oberflächenwasser gegenüber dem Grund- oder Quellwasser durch Entgasen zurückzuführen.

Bei den im Mittel vorliegenden Impulsraten beträgt der statistische Zählfehler sowohl für die  $\alpha$ - als auch für die  $\beta$ -Messung nach Beziehung (12) etwa 30 %. Er ist damit geringer als die entsprechenden Fehler bei den

Tab. 21

| Langlebige $\alpha$ - und $\beta$ -Aktivität des Oberflächenwassers<br>in pc/l |                  |          |                |               |           |
|--|------------------|----------|----------------|---------------|-----------|
| Wasserlauf   | Probenahmestelle | Datum    | $\alpha$ -Akt. | $\beta$ -Akt. | Rest-Akt. |
| Rur  | Obermaubach      | 6. 1.60  |                | 7             | 5         |
|  |                  | 2. 2.60  |                | < 3           | < 3       |
|  |                  | 1. 3.60  |                | 7             | 4         |
|  |                  | 5. 4.60  |                | 3             | < 3       |
|  |                  | 3. 5.60  |                | 3             | < 3       |
|  | Seilhausen       | 6. 1.60  |                | 12            | 8         |
|  |                  | 19. 1.60 |                | 8             | 3         |
|  |                  | 2. 2.60  |                | < 3           | < 3       |
|  |                  | 16. 2.60 |                | 8             | < 3       |
|  |                  | 1. 3.60  |                | 7             | 3         |
|  |                  | 15. 3.60 |                | 11            | 6         |
|  |                  | 5. 4.60  |                | 6             | < 3       |
|  |                  | 19. 4.60 | 0,7            | 9             | 6         |
|  |                  | 3. 5.60  |                | 8             | 3         |
|  |                  | 17. 5.60 |                | 8             | 4         |
|  | Krauthausen      | 23. 9.60 | 5,7            |               |           |
|  |                  | 30. 9.60 | 0,8            | 5             | < 3       |
|  |                  | 7.10.60  |                | 6             | 3         |
|  |                  | 10.10.60 | 0,7            |               |           |
|  |                  | 14.10.60 |                | 6             | < 3       |
|  |                  | 17.10.60 | 0,5            |               |           |
|  |                  | 21.10.60 |                | 6             | < 3       |
|  |                  | 24.10.60 | 0,4            |               |           |
|  |                  | 28.10.60 |                | 11            | 7         |
|  |                  | 4.11.60  |                | 5             | < 3       |
|  |                  | 7.11.60  | 0,4            |               |           |
|  |                  | 11.11.60 |                | 5             | 3         |
|  |                  | 14.11.60 | 0,5            |               |           |
|  |                  | 18.11.60 |                | 9             | 5         |
|  |                  | 24.11.60 | 0,4            |               |           |
|  |                  | 25.11.60 |                | 4             | < 3       |
|  |                  | 1.12.60  | 2,0            |               |           |
|  |                  | 2.12.60  |                | 5             | < 3       |
|  |                  | 9.12.60  |                | 6             | 4         |
|  |                  | 12.12.60 | 0,4            |               |           |
|  |                  | 15.12.60 | 0,3            |               |           |
|  |                  | 16.12.60 |                | 4             | < 3       |
|  |                  | 23.12.60 |                | 5             | < 3       |
|  |                  | 30.12.60 |                | 7             | 4         |
|  | Selgersdorf      | 8. 6.60  |                | 8             | 3         |
|  |                  | 14. 6.60 |                | 6             | < 3       |
|  |                  | 21. 6.60 |                | 11            | 6         |
|  |                  | 28. 6.60 |                | 8             | 3         |
|  |                  | 5. 7.60  |                | 3             | < 3       |
|  |                  | 12. 7.60 |                | 7             | 5         |
|  |                  | 19. 7.60 |                | 5             | < 3       |
|  |                  | 26. 7.60 |                | 3             | < 3       |
|  |                  | 2. 8.60  |                | 8             | 5         |
|  |                  | 9. 8.60  |                | 6             | 3         |
|  |                  | 19. 8.60 |                | 11            | 5         |
|  |                  | 9. 9.60  |                | 5             | < 3       |
|  |                  | 16. 9.60 |                | 12            | 9         |
|  |                  | 23. 9.60 |                | 19            | 12        |

Tab.21 Fortsetzung

| Wasserlauf | Probennahmestelle | Datum    | $\alpha$ -Akt. | $\beta$ -Akt. | Rest-Akt. |
|------------|-------------------|----------|----------------|---------------|-----------|
| Rur        | Kirchberg         | 2. 2.60  |                | 9             | 4         |
|            |                   | 1. 3.60  |                | 10            | 6         |
|            |                   | 5. 4.60  |                | 7             | < 3       |
|            |                   | 3. 5.60  |                | 13            | 8         |
|            | Jülich            | 6. 1.60  |                | 17            | 11        |
|            |                   | 19. 1.60 |                | 6             | < 3       |
|            |                   | 2. 2.60  |                | 5             | < 3       |
|            |                   | 16. 2.60 |                | 6             | < 3       |
|            |                   | 1. 3.60  |                | 13            | 9         |
|            |                   | 15. 3.60 |                | 5             | < 3       |
|            |                   | 5. 4.60  |                | 5             | < 3       |
|            |                   | 19. 4.60 |                | 13            | 9         |
|            |                   | 3. 5.60  |                | 15            | 9         |
|            |                   | 17. 5.60 |                | 7             | 3         |
|            |                   | 8. 6.60  |                | < 3           | < 3       |
|            |                   | 14. 6.60 |                | 6             | < 3       |
|            |                   | 21. 6.60 |                | 7             | < 3       |
|            |                   | 28. 6.60 |                | 7             | < 3       |
|            |                   | 5. 7.60  |                | 5             | < 3       |
|            |                   | 12. 7.60 |                | 5             | < 3       |
|            |                   | 19. 7.60 |                | 3             | < 3       |
|            |                   | 26. 7.60 |                | 4             | < 3       |
|            |                   | 2. 8.60  |                | 5             | 3         |
|            |                   | 9. 8.60  |                | 8             | 4         |
|            |                   | 15. 8.60 | 0,3            |               |           |
|            |                   | 19. 8.60 |                | 12            | 7         |
|            |                   | 26. 8.60 |                | 6             | 3         |
|            |                   | 2. 9.60  |                | 18            | 14        |
|            |                   | 9. 9.60  |                | 8             | 5         |
|            |                   | 16. 9.60 |                | 7             | 3         |
|            |                   | 23. 9.60 | 1,8            | 9             | 5         |
|            |                   | 30. 9.60 |                | 14            | 11        |
|            |                   | 2.10.60  | 0,2            |               |           |
|            |                   | 7.10.60  |                | 7             | 3         |
|            |                   | 14.10.60 | 1,3            | 12            | 8         |
|            |                   | 21.10.60 |                | 7             | 4         |
|            |                   | 28.10.60 | 0,8            | 7             | 7         |
|            |                   | 4.11.60  | 0,7            | 7             | 5         |
|            |                   | 11.11.60 | 0,4            | 5             | < 3       |
|            |                   | 18.11.60 | 0,6            | 6             | 3         |
|            |                   | 25.11.60 | 1,9            | 9             | 5         |
|            |                   | 2.12.60  |                | 6             | 3         |
|            |                   | 9.12.60  |                | 6             | 4         |
|            |                   | 16.12.60 | 0,2            | 4             | < 3       |
|            |                   | 23.12.60 | 0,2            | 9             | 6         |
|            |                   | 30.12.60 | 0,5            | 8             | 5         |
|            | Linnich           | 6. 1.60  |                | 21            | 14        |
|            |                   | 2. 2.60  |                | 5             | < 3       |
|            |                   | 1. 3.60  |                | 9             | 4         |
|            |                   | 5. 4.60  |                | 8             | 4         |
|            | Hückelhoven       | 3. 5.60  |                | 9             | 3         |
|            |                   | 6. 1.60  |                | 16            | 10        |
|            |                   | 2. 2.60  |                | 4             | < 3       |
|            |                   | 1. 3.60  |                | 12            | 7         |
|            |                   | 5. 4.60  |                | 8             | 3         |
|            |                   | 3. 5.60  |                | 8             | < 3       |

Tab.21 Fortsetzung

| Wasserlauf | Probennahmestelle | Datum    | $\alpha$ -Akt. | $\beta$ -Akt. | Rest-Akt. |
|------------|-------------------|----------|----------------|---------------|-----------|
| Rur        | Oberbruch         | 6. 1.60  |                | 18            | 12        |
|            |                   | 2. 2.60  |                | 17            | 11        |
|            |                   | 1. 3.60  |                | 19            | 13        |
|            |                   | 5. 4.60  |                | 8             | 3         |
|            |                   | 3. 5.60  |                | 12            | 5         |
|            | Kempen            | 6. 1.60  |                | 39            | 32        |
|            |                   | 2. 2.60  |                | 8             | < 3       |
|            |                   | 1. 3.60  |                | 32            | < 3       |
|            |                   | 5. 4.60  |                | 12            | 6         |
|            |                   | 3. 5.60  |                | 10            | 3         |
|            |                   | 8. 6.60  |                | 9             | < 3       |
|            |                   | 14. 6.60 |                | 15            | 3         |
|            |                   | 21. 6.60 |                | 13            | 3         |
|            |                   | 28. 6.60 |                | 13            | 3         |
|            |                   | 5. 7.60  |                | 9             | < 3       |
|            |                   | 12. 7.60 |                | 8             | < 3       |
|            |                   | 19. 7.60 |                | 16            | 4         |
|            |                   | 26. 7.60 |                | 9             | 3         |
|            |                   | 9. 8.60  |                | 15            | 8         |
|            |                   | 19. 8.60 |                | 10            | 7         |
|            |                   | 26. 8.60 |                | 9             | < 3       |
|            |                   | 2. 9.60  |                | 16            | 11        |
|            |                   | 9. 9.60  |                | 16            | 10        |
|            |                   | 16. 9.60 |                | 9             | 3         |
|            |                   | 23. 9.60 |                | 6             | < 3       |
|            |                   | 28. 9.60 | 2              |               |           |
|            |                   | 30. 9.60 |                | 11            | 4         |
|            |                   | 7.10.60  | 0,8            | 10            | < 3       |
|            |                   | 14.10.60 | 1,1            | 17            | 11        |
|            |                   | 21.10.60 | 1,8            | 10            | < 3       |
|            |                   | 28.10.60 | 1,5            | 13            | 8         |
|            |                   | 4.11.60  | 4,4            | 18            | 12        |
|            |                   | 10.11.60 | 4,4            |               |           |
|            |                   | 11.11.60 | 1,6            | 7             | < 3       |
|            |                   | 18.11.60 |                | 22            | 9         |
|            |                   | 25.11.60 | 0,7            | 6             | < 3       |
|            |                   | 2.12.60  | 1,1            | 8             | < 3       |
|            |                   | 9.12.60  | 0,6            | 12            | 6         |
|            |                   | 16.12.60 | 0,7            | 7             | 3         |
|            |                   | 23.12.60 | 1,2            | 6             | < 3       |
|            |                   | 30.12.60 | 0,2            | 11            | 5         |
| Inde       | Altdorf           | 6. 1.60  |                | 26            | 20        |
|            |                   | 2. 2.60  |                | 14            | 10        |
|            |                   | 1. 3.60  |                | 12            | 7         |
|            |                   | 5. 4.60  |                | 7             | < 3       |
|            |                   | 3. 5.60  |                | 10            | 4         |
|            | Kirchberg         | 8. 6.60  |                | 7             | < 3       |
|            |                   | 14. 6.60 |                | 8             | < 3       |
|            |                   | 21. 6.60 |                | 10            | < 3       |
|            |                   | 28. 6.60 |                | 9             | < 3       |
|            |                   | 5. 7.60  |                | 6             | < 3       |
|            |                   | 12. 7.60 |                | 8             | < 3       |
|            |                   | 19. 7.60 |                | 7             | < 3       |
|            |                   | 26. 7.60 |                | 4             | < 3       |

Tab.21 Fortsetzung

| Wasserlauf | Probennahmestelle | Datum    | $\alpha$ -Akt. | B-Akt. | Rest-Akt. |
|------------|-------------------|----------|----------------|--------|-----------|
| Inde       | Kirchberg         | 2. 8.60  |                | 11     | 6         |
|            |                   | 9. 8.60  |                | 10     | 3         |
|            |                   | 19. 8.60 |                | 10     | 4         |
|            |                   | 26. 8.60 |                | 14     | 7         |
|            |                   | 2. 9.60  |                | 20     | 15        |
|            |                   | 9. 9.60  |                | 8      | 4         |
|            |                   | 16. 9.60 |                | 14     | 7         |
|            |                   | 23. 9.60 |                | 20     | 16        |
|            |                   | 28. 9.60 | 1,2            |        |           |
|            |                   | 30. 9.60 |                | 8      | 3         |
|            |                   | 3.10.60  | 0,8            |        |           |
|            |                   | 7.10.60  |                | 7      | < 3       |
|            |                   | 10.10.60 | 0,8            |        |           |
|            |                   | 13.10.60 | 0,8            |        |           |
|            |                   | 14.10.60 |                | 10     | 7         |
|            |                   | 20.10.60 | 0,2            |        |           |
|            |                   | 21.10.60 |                | 9      | 4         |
|            |                   | 27.10.60 | 0,8            |        |           |
|            |                   | 28.10.60 |                | 10     | 4         |
|            |                   | 4.11.60  |                | 10     | 7         |
|            |                   | 10.11.60 | 0,6            |        |           |
|            |                   | 11.11.60 |                | 10     | 7         |
|            |                   | 17.11.60 | 1,1            |        |           |
|            |                   | 18.11.60 |                | 8      | < 3       |
|            |                   | 24.11.60 | 0,7            |        |           |
|            |                   | 25.11.60 |                | 19     | 13        |
|            |                   | 1.12.60  | 0,8            |        |           |
|            |                   | 2.12.60  |                | 4      | < 3       |
|            |                   | 8.12.60  | < 0,2          |        |           |
|            |                   | 9.12.60  |                | 9      | 5         |
|            |                   | 15.12.60 | 0,7            |        |           |
|            |                   | 16.12.60 |                | 6      | < 3       |
|            |                   | 23.12.60 |                | 6      | 3         |
|            |                   | 30.12.60 |                | 15     | 12        |
| Elle       | Hambach           | 6. 1.60  |                | 13     | 5         |
|            |                   | 19. 1.60 |                | 12     | < 3       |
|            |                   | 20. 1.60 | < 0,2          |        |           |
|            |                   | 2. 2.60  |                | 8      | < 3       |
|            |                   | 16. 2.60 |                | 5      | < 3       |
|            |                   | 22. 2.60 | 0,7            |        |           |
|            |                   | 1. 3.60  |                | 10     | 3         |
|            |                   | 15. 3.60 |                | 8      | < 3       |
|            |                   | 21. 3.60 | 0,4            |        |           |
|            |                   | 5. 4.60  |                | 9      | < 3       |
|            |                   | 19. 4.60 |                | 16     | 14        |
|            |                   | 3. 5.60  |                | 14     | 5         |
|            |                   | 17. 5.60 | 1,1            |        |           |
|            |                   | 7. 6.60  | 0,3            |        |           |
|            |                   | 20. 7.60 | 0,6            |        |           |
|            | Jülich            | 6. 1.60  |                | 12     | 10        |
|            |                   | 19. 1.60 |                | 6      | < 3       |
|            |                   | 2. 2.60  |                | 4      | < 3       |
|            |                   | 16. 2.60 |                | 5      | < 3       |
|            |                   | 1. 3.60  |                | 9      | 3         |

Tab.21 Fortsetzung

| Wasserlauf  | Probennahmestelle | Datum    | $\alpha$ -Akt. | $\beta$ -Akt. | Rest-Akt. |
|-------------|-------------------|----------|----------------|---------------|-----------|
| Elle        | Jülich            | 15. 3.60 |                | 7             | < 3       |
|             |                   | 5. 4.60  |                | 6             | < 3       |
|             |                   | 19. 4.60 |                | 13            | 4         |
|             |                   | 3. 5.60  |                | 11            | 5         |
|             |                   | 17. 5.60 |                | < 3           | < 3       |
| Ikke        | Jülich            | 6. 1.60  |                | 6             | 3         |
|             |                   | 19. 1.60 |                | 3             | < 3       |
|             |                   | 2. 2.60  |                | < 3           | < 3       |
|             |                   | 16. 2.60 |                | < 3           | < 3       |
|             |                   | 1. 3.60  |                | 5             | < 3       |
|             |                   | 15. 3.60 |                | 3             | < 3       |
|             |                   | 5. 4.60  |                | 6             | 4         |
|             |                   | 19. 4.60 |                | 5             | < 3       |
|             |                   | 3. 5.60  |                | 10            | 8         |
| Mühlenteich | Jülich            | 17. 5.60 |                | < 3           | < 3       |
|             |                   | 6. 1.60  |                | 11            | 7         |
|             |                   | 19. 1.60 |                | 11            | 6         |
|             |                   | 2. 2.60  |                | 9             | 4         |
|             |                   | 16. 2.60 |                | 7             | < 3       |
|             |                   | 1. 3.60  |                | 11            | 8         |
|             |                   | 15. 3.60 |                | 9             | 4         |
|             |                   | 5. 4.60  |                | 10            | 6         |
|             |                   | 19. 4.60 |                | 5             | < 3       |
| Wurm        | Kempen            | 3. 5.60  |                | 6             | 4         |
|             |                   | 17. 5.60 |                | 6             | < 3       |
|             |                   | 6. 1.60  |                | 32            | 23        |
|             |                   | 2. 2.60  |                | 14            | 5         |
|             |                   | 1. 3.60  |                | 31            | 21        |
|             |                   | 5. 4.60  |                | 19            | 8         |
|             |                   | 3. 5.60  |                | 18            | 8         |

Tab.22

| Kurzlebige $\beta$ -Aktivität von Oberflächenwasser in pc/l |          |                    |
|---|----------|--------------------|
| Entnahmestelle  | Datum    | $\beta$ -Aktivität |
| Rur bei Jülich  | 24.11.60 | 41                 |
|   | 1.12.60  | 28                 |
|   | 8.12.60  | 19                 |
|   | 15.12.60 | 26                 |
|   | 22.12.60 | 14                 |



Grund- und Trinkwässern und kann, verglichen mit den bei Probennahme und Aufbereitung auftretenden methodischen Fehlern u.U. vernachlässigt werden.

Die Schwankungen bei der Probennahme hängen damit zusammen, daß der wahre Wert der Oberflächenwasseraktivität wegen der Inhomogenität der Aktivitätsverteilung gar nicht exakt definiert ist. Selbst bei zunächst guter mechanischer Durchmischung der in den Wasserlauf eingeleiteten radioaktiven Abwässer können sich infolge wechselnder Strömungsverhältnisse (Änderung des Schwebestoffgehaltes), chemischer Zusammensetzung (pH-Wert usw.), Führung von Schlamm und organischen Verunreinigungen (Anlagerung und Anreicherung von Aktivitäten) sehr bald wieder örtlich und zeitlich veränderliche Konzentrationsverhältnisse einstellen.

Hält sich die Schwankung der Aktivitätsverteilung bei der Nullpegelmessung auch noch in solchen Grenzen, daß sich die Größe der Oberflächenwasseraktivität durch Stichproben mit ausreichender Genauigkeit ermitteln läßt, so ist im Betriebsfalle beim Ablassen von radioaktiven Abwässern aus der Kernforschungsanlage eine größere Variabilität der Aktivitätskonzentration möglich, obwohl die radioaktiven Abwässer nicht schwallweise abgelassen werden. In diesem Falle können stichprobenweise Wasserüberwachungen nicht mehr genügen, und es müssen kontinuierliche Probennahmeverfahren angewendet werden, die einen Mittelwert der Aktivitätskonzentration (Wochenmittel oder Tagesmittel) zu erfassen gestatten.

Wegen der starken statistischen Schwankungen, die sich größtenteils aus den undefinierten Bedingungen bei der Probennahme und bei kleinen Aktivitäten aus dem Zählfehler zusammensetzen - bei den Rest- $\beta$ -Aktivitäten tritt noch die Unsicherheit bei der K-40-Aktivität hinzu - halten wir es nicht für sinnvoll, den Jahresverlauf der Oberflächenwasseraktivität für die einzelnen Meßstellen anzugeben. Wir haben lediglich in Tab.23 die Mittelwerte der Aktivitätskonzentration an den Probennahmestellen für das Berichtsjahr 1960 zusammengestellt. Dazu muß bemerkt werden, daß ab Juni 1960 nur noch die Wasserläufe Rur (bei Jülich, Selgersdorf bzw. Krauthausen und Kempen) sowie Inde (bei Kirchberg) überwacht wurden. Betrachtet man die Aktivitätskonzentration in der Rur, so fällt auf, daß die Gesamt- $\beta$ -Aktivität in Obermaubach den kleinsten Wert hat, während sie rurabwärts beträchtlich zunimmt. Ein guter Teil der Aktivitätserhöhung ist der Zunahme der

Tab.23

Mittelwerte der  $\alpha$ -,  $\beta$ - und Rest- $\beta$ -Aktivität  
des Oberflächenwassers in pc/l im Jahre 1960

| Wasserlauf  | Probennahmestelle | $\alpha$ -Aktivität | $\beta$ -Aktivität | Kalium=<br>Aktivität | Rest=<br>$\beta$ -Aktivität |
|-------------|-------------------|---------------------|--------------------|----------------------|-----------------------------|
| Rur         | Obermaubach       |                     | 4,0                | 1,4                  | 2,6                         |
|             | Selhausen         | 0,7                 | 8,0                | 4,3                  | 3,7                         |
|             | Krauthausen       | 0,6                 | 6,0                | 3,0                  | 3,0                         |
|             | Selgersdorf       |                     | 8,0                | 3,8                  | 4,2                         |
|             | Kirchberg         |                     | 9,7                | 4,7                  | 5,0                         |
|             | Jülich            | 0,7                 | 7,4                | 3,1                  | 4,3                         |
|             | Mersch            |                     | 10,4               | 5,0                  | 5,4                         |
|             | Hückelhoven       |                     | 9,6                | 5,0                  | 4,6                         |
|             | Oberbruch         |                     | 14,8               | 6,0                  | 8,8                         |
|             | Kempen            | 1,5                 | 12,7               | 7,6                  | 5,1                         |
| Inde        | Altdorf           |                     | 13,8               | 5,4                  | 8,4                         |
|             | Kirchberg         | 0,7                 | 9,9                | 5,1                  | 4,8                         |
| Elle        | Hambach           | 0,5                 | 10,5               | 6,7                  | 3,8                         |
|             | Jülich            |                     | 7,4                | 4,3                  | 3,1                         |
| Ikte        | Jülich            |                     | 4,2                | 1,6                  | 2,6                         |
| Mühlenteich | Jülich            |                     | 8,5                | 4,1                  | 4,4                         |
| Wurm        | Kempen            |                     | 22,8               | 9,8                  | 13,0                        |

Kalium-Konzentration zuzuschreiben, das mit Industrieabwässern und infolge des Braunkohlenbergbaus an die Rur abgegeben wird. Besonders hoch liegen die Aktivitätswerte der Wurm, die außer einer hohen Kalium-Konzentration auch einen großen Feststoffgehalt aufweist, der in der Regel mit höheren Aktivitätswerten verbunden ist (im Schlamm liegt die Aktivität im allgemeinen gegenüber dem Wasser angereichert vor (vgl. 2.24)). So ist die

mittlere  $\beta$ -Aktivität der Rur im Einleitungsbereich der Abwässer der Kernforschungsanlage oberhalb und unterhalb des Entwässerungsgrabens (bei Selhausen, Krauthausen, Selgersdorf und Jülich) merklich geringer (Gesamt- $\beta$ -Aktivität = 7,2 pc/l, Rest- $\beta$ -Aktivität = 3,8 pc/l) als etwa bei Kempen (Gesamt- $\beta$ -Aktivität = 12,7 pc/l, Rest- $\beta$ -Aktivität = 5,1 pc/l).

In Abb.19 sind die einzelnen Anteile der Oberflächenwasser-Aktivität ( $\alpha$ -,  $\beta$ -, Rest- $\beta$ -Aktivität) als Monatsmittelwert über alle Probennahmestellen angegeben. Die Differenz zwischen Gesamt- $\beta$ -Aktivität und Rest- $\beta$ -Aktivität, d.h. die Aktivitätskonzentration von K-40 erweist sich als einigermaßen konstant, was in einer linearen Darstellung noch deutlicher hervortreten würde. Die  $\alpha$ -Aktivität liegt etwa eine Größenordnung unterhalb der  $\beta$ -Aktivität.

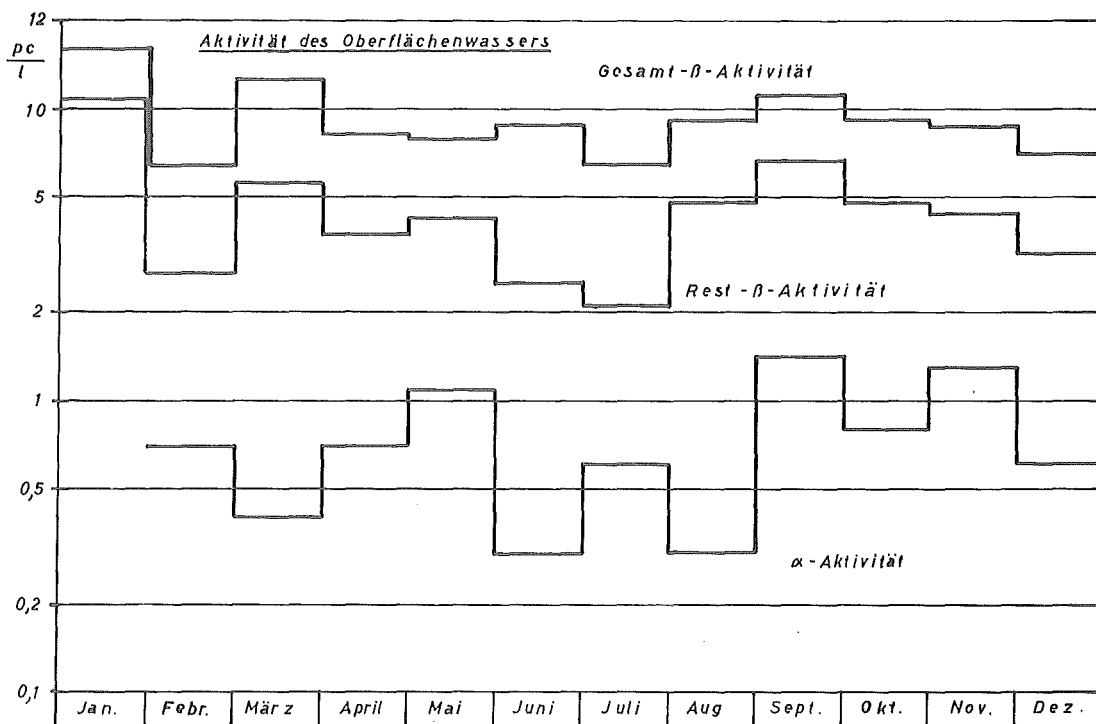


Abb.19. Monatsmittel der Aktivität des Oberflächenwassers (gemittelt über alle Meßstellen).

Zur Beurteilung des Aktivitätsverlaufs im Oberflächenwasser seit Beginn unserer Meßtätigkeit im März 1958 sind in Abb.20 noch einmal die Monatsmittelwerte der  $\beta$ -Aktivität graphisch dargestellt. Auch hier ist wie bei den Aerosolen und Gesamtniederschlägen das Abklingen der Aktivität im auf die Beendigung der Atombombenversuche folgenden Frühsommer festzustellen.

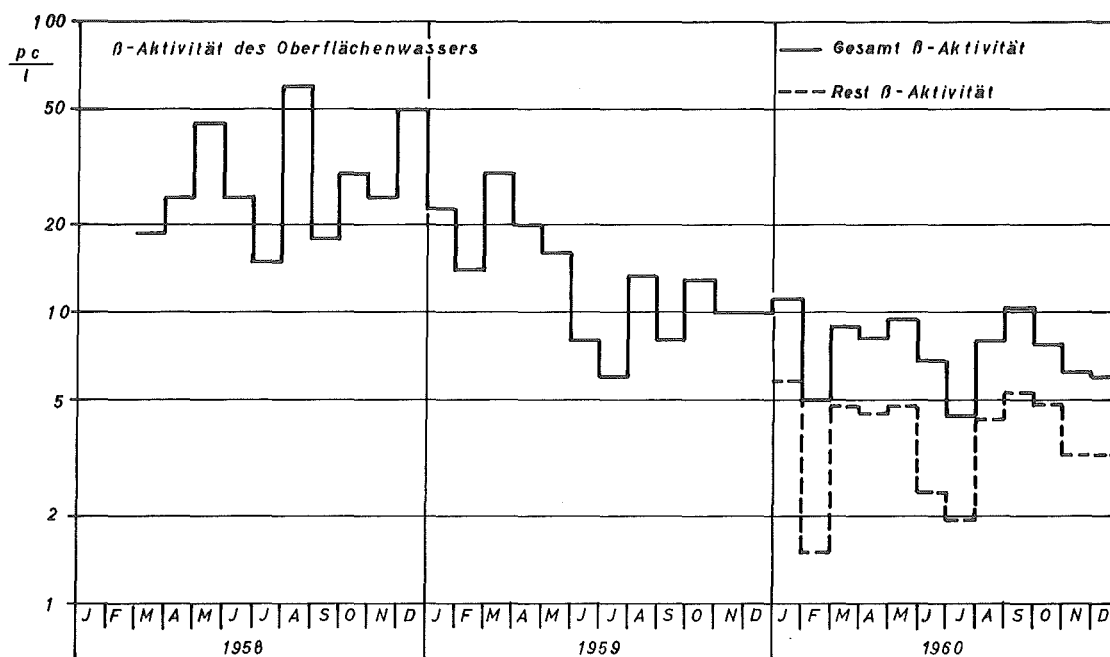


Abb. 20. Monatsmittelwerte der  $\beta$ -Aktivität des Oberflächenwassers an den Meßstellen oberhalb und unterhalb der Einleitungsstelle des Entwässerungsgrabens

Wegen des höheren Anteils der Nuklide natürlicher Herkunft ist die Reduktion der Aktivität im Oberflächenwasser aber geringer als etwa bei den Aerosolen und Gesamtniederschlägen (vgl. Tab. 24). Während letztere etwa auf  $1/20$  ihrer Werte von 1958 abfielen, geht die Aktivität im Oberflächenwasser nur von 31,2 auf 7,8 pc/l, d.h. auf  $1/4$  zurück. Das würde bedeuten, daß 1958 mindestens  $3/4$  der langlebigen Aktivität im Oberflächenwasser auf Spaltprodukte aus Atombombentests entfielen.

Tab. 24

Jahresmittelwerte bzw. Jahressummen verschiedener Meßgrößen

| Meßgröße  | 1958             | 1959 | 1960 |
|---|------------------|------|------|
| Langleb. $\beta$ -Akt. der Aerosole in $\text{pc}/\text{m}^3$                     | 2 <sup>(1)</sup> | 1    | 0,13 |
| $\beta$ -Aktivität d. Gesamtniederschlags<br>in $\text{mc}/\text{km}^2 \text{ a}$ | 588              | 280  | 32   |
| Langleb. $\beta$ -Akt. d. Oberflächenwassers<br>in $\text{pc}/\text{l}$           | 31,2             | 14,3 | 7,8  |

(1) aus fremden Meßergebnissen und eigenen Anschlußwerten geschätzter Mittelwert für 1958

In Abb. 21 haben wir den zeitlichen Verlauf des Mittelwerts der Oberflächenwasseraktivität der Rur im Laufe des Jahres 1960 (die Meßpunkte wurden der Anschaulichkeit halber durch einen hypothetischen Linienzug verbunden) und zum Vergleich die wöchentlich dem Boden zugeführten Niederschlagsaktivitäten (Staub und Regen) in Form einer Treppenkurve dargestellt; darüber sind die Niederschlagsmengen aufgetragen.

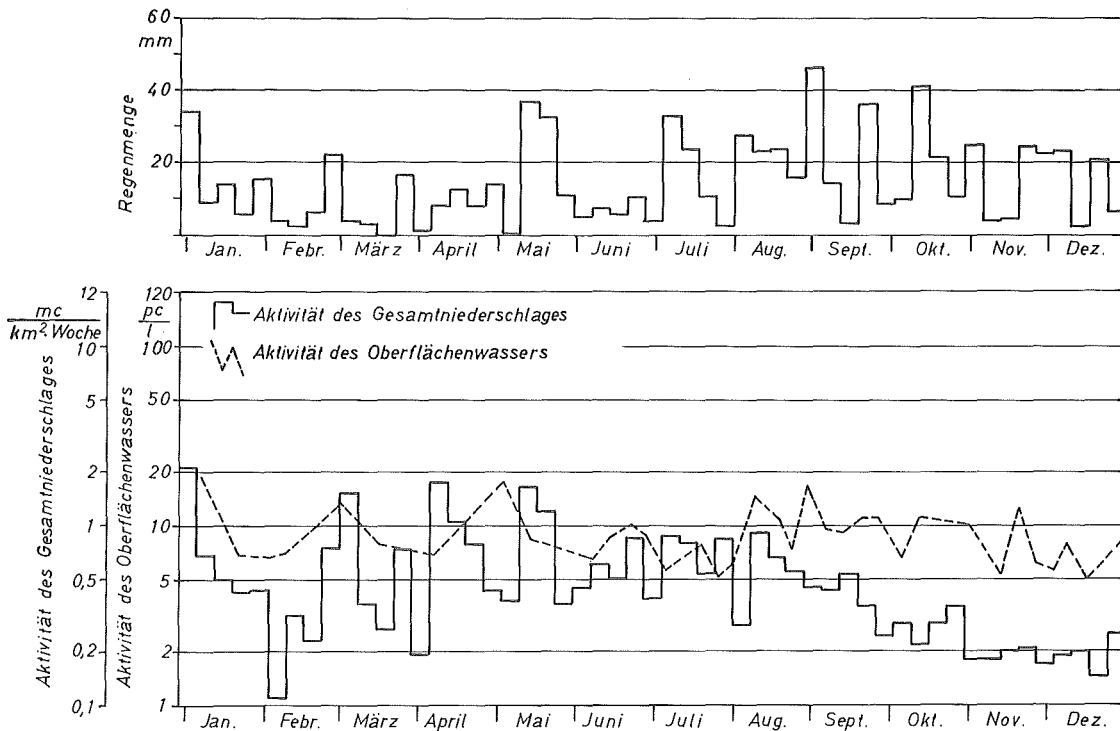


Abb. 21. Korrelationen zwischen der Aktivität des Oberflächenwassers und des Gesamtniederschlags sowie Regenmenge 1960

Zwischen den Niederschlagsmengen und den dem Boden zugeführten Aktivitäten ergab sich früher, als noch höhere Spaltproduktaktivitäten vorlagen, eine gute Korrelation (vgl. (1)). Es muß aber darauf hingewiesen werden, daß man daraus nicht auf eine Proportionalität der Niederschlagsaktivität und der Flächenaktivität schließen darf. Die dem Boden zugeführte Aktivität wird zwar durch jeden Regen gesteigert, jedoch ist die spezifische Aktivität des Niederschlags nicht konstant, sondern hängt, wie oben angeführt, von verschiedenen meteorologischen Bedingungen ab (Bildungsmechanismus, Stärke und Dauer des Regens). Außerdem ist zu beachten, daß im Gesamtniederschlag auch die Aktivität des sedimentierenden Staubes enthalten ist, dessen Anteil stark von der Niederschlagsmenge abhängt, im Mittel aber nur ca. 20 % der Gesamtniederschlagsaktivität beträgt.

Da ein wechselnder Bruchteil der Aktivität des Oberflächenwassers auf Spaltprodukte zurückgeht, kann zwischen der spezifischen Oberflächenwasseraktivität und der Falloutaktivität eine gewisse Korrelation bestehen. Auch mit der Regenmenge kann ein indirekter Zusammenhang gegeben sein, weil die spezifische Aktivität des Regens (so lange keine radioaktiven Abwässer vorliegen) größer ist als die spezifische Aktivität des Oberflächenwassers. Im Jahre 1960 traten nach dem Rückgang des künstlichen radioaktiven Fallout nur noch vereinzelt Entsprechungen in den Niederschlags- und Oberflächenwasseraktivitäten auf, die nicht mehr unbedingt als signifikant anzusehen sind. Die Korrelation zwischen Oberflächenwasser- und Niederschlagsaktivität müßte etwas deutlicher hervortreten, wenn die natürlich radioaktiven Bestandteile des Oberflächenwassers abgezogen worden wären.

Die von uns gemessenen Aktivitäten des Oberflächenwassers liegen, wie auch die Grund- und Trinkwasserwerte, in derselben Größenordnung wie die vom Bundesatomministerium (48) referierten Resultate anderer Meßstationen.

#### 2.24 Aktivität von Schlamm und biologischen Objekten im Oberflächenwasser.

##### 2.241 Grundlagen

Wegen der Möglichkeit einer Anreicherung radioaktiver Substanz in Wasserpflanzen, Wassertieren und Schlamm wurde bereits im Jahresbericht 1959 auf die Notwendigkeit hingewiesen, auch dieses Material in die Routineüberwachung der Oberflächenwässer, insbesondere der Rur einzubeziehen. Es wurde von unserer Seite vorgesehen, derartige Untersuchungen oberhalb und unterhalb der Einmündung des Abwasserkanales durchzuführen. Zur Festlegung geeigneter Entnahmestellen mußte zunächst eine biologische Bestandsaufnahme der Rur in bescheidenem Rahmen durchgeführt werden. Dies erfolgte im Frühjahr und Sommer des Berichtsjahres unter Mitarbeit einer erfahrenen biologischen Fachkraft, wobei besonders Plankton/Seston und einige Wasserpflanzen berücksichtigt und Proben an mehreren Stellen zwischen Untermuibach und Kempen entnommen wurden.

Die Probennahme des Planktons erfolgte am 21.6. und 19.7.1960, d.h. es handelte sich um typisches Sommerplankton. Die Proben wurden mikroskopisch

bzw. mikrophotographisch qualitativ auf ihre Bestandteile untersucht, wobei sich folgendes Bild ergab:

Ein reiches Flußplankton findet sich nur in der Probe von Untermaubach. Das Phytoplankton umfaßt Kieselalgen und Grünalgen. Die beobachteten Kieselalgen gehören den Gattungen *Fragilaria*, *Navicula*, *Diatoma*, *Melosira*, *Asterionella* und *Surirella* an, die gefundenen Grünalgen den Gattungen *Mougeotia*, *Desmidium*, *Closterium*, *Ulothrix* und *Tribonema*. Im Zooplankton findet sich die Geißeltierchenkolonie *Uroplectonopsis*, ferner Ciliaten, z.B. *Paramecium spec.*, Süßwasserkrebse wie *Bosmina* mit den entsprechenden Nauplien sowie Rädertierchen. Über die Häufigkeit der einzelnen Organismen läßt sich an Hand der Photographien keine Aussage machen.

Die Proben der anderen Probennahmestellen in Selhausen, Jülich und Kempen enthalten außerordentlich wenig Plankton. Besonders stark ist die Verarmung an Mikroorganismen in den Proben aus Selhausen und Kempen. Die Mikrophotographien dieses Materials zeigen neben den zahlreich auftretenden Zellulosefasern, unbelebten Schwebestoffen, Kohleteilchen und Pflanzenresten des Uferbewuchses nur vereinzelt Kieselalgen wie *Synedra*, *Chlosterium*, *Spirogyra*, *Cladophora* und Kolonien der Ciliaten *Stentor* und *Vorticella*. (*Spirogyra* und *Cladophora* sind keine echten Planktonorganismen, sondern Pflanzen, die von dem Strom von ihrer Unterlage abgerissen werden und erst sekundär im Plankton auftreten).

Eine Messung der Radioaktivität des Planktons und Sestons wurde im Jahre 1960 noch nicht durchgeführt, da ein geeignetes Sammelgerät entwickelt werden mußte, das über die konventionelle Plankton-Entnahmemethode mit Netzen aus Müller-Gaze hinaus auch die das Plankton enthaltende Wassermenge als weitere Bezugsgröße zu messen gestattet.

Dieses Gerät wurde inzwischen fertiggestellt und erprobt. Mitteilungen über die Funktion des Gerätes, über erzielte Ergebnisse und über die Aufnahme der Planktonuntersuchungen in den Routinebetrieb erscheinen im Jahresbericht 1961.

Die Entnahme von Wasserpflanzen erfolgte einmal und zwar Mitte August 1960. Hier kam es vor allen Dingen darauf an, festzustellen, welche Pflanzen-

arten an den für die Routineüberwachung vorgesehenen Entnahmestellen am häufigsten auftreten.

In Untermaubach zeigt die Rur eine reiche Wasserflora. Es finden sich umfangreiche Vorkommen von Grünalgen, unter denen *Mougeotia* und *Cladophora* leicht in Proben von mehreren kg entnommen werden können. Unter den höheren Pflanzen dringt das Quellmoos (*Fontinalis*) bis in größere Tiefen vor. In der Uferzone wurden zwei verschiedene Arten des Wassersterns (*Callitriche*) gefunden, die nicht näher bestimmt werden konnten, da Blüten und Früchte fehlten. Es sind ferner Proben des flutenden Hahnenfuß (*Ranunculus fluitans*) und der Wasserpest (*Helodea canadensis*) gearbeitet worden. Die genannten Pflanzen treten in großen Mengen auf.

Untersuchungen der Rur bei Jülich ergaben ein völlig anderes Bild. An mehreren Stellen zwischen der Fußgängerbrücke an der Kirchberger Straße und dem Zufluß der Inde bei Kirchberg konnten keine Wasserpflanzen gefunden werden. Das Auffinden der Pflanzen wird durch den hohen Gehalt des Rurwassers an unbelebten Schwebstoffen und schäumenden Netzmitteln stark erschwert. Unterhalb der Rurbrücke bei Jülich konnten an einem Holzsteg große Mengen des kammförmigen Laichkrauts (*Potamogeton pectinatus*) gesammelt werden. Die geringere Ausbeute an *Potamogeton crispus*, das auch in Untermaubach vorkommt, und *Fontinalis* läßt sich auf die schon ungünstige Jahreszeit zurückführen. Beide Pflanzen sind am selben Fundort wie *Potamogeton pectinatus* entnommen worden. Am Ufer tritt die Grünalge *Spirogyra* in größeren Mengen auf.

Zwischen Selhausen und Altenburg, also im Rurlauf unmittelbar oberhalb der Einmündung des Abwasserkanals gibt es kaum geeignete Stellen zur Entnahme von Wasserpflanzen. Um also den beabsichtigten Vergleich durchführen zu können, ist es zweckmäßig, die eine Entnahmestelle nach Untermaubach (Nullpegel) und die andere nach Jülich zu legen und zweimal im Jahr Proben zu nehmen, denn ein solcher Vergleich ist nur mit Pflanzen möglich, die an beiden Meßstellen in ausreichender Menge auftreten. Für diese Messungen eignen sich aus diesem Grund *Fontinalis* (Quellmoos) und *Potamogeton crispus* (krauses Laichkraut). Proben dieser Pflanzen lassen sich am günstigsten im Mai und Juli entnehmen. Die Verwendung von Grünalgen ist für diese Untersuchungen ungeeignet, da die in Untermaubach und in der Rur bei Jülich vorkommenden Pflanzen verschiedenen systematischen



Ordnungen und Gattungen angehören.

Die Entnahme von Fischproben wird im eigenen Bereich nicht durchgeführt, da die hierzu erforderlichen Fangmethoden (elektrisches Fischfanggerät) für uns zu aufwendig sind. Es wurde aber mit dem Ruhrverband Essen <sup>(1)</sup> eine Vereinbarung getroffen, nach welcher wir von dort einen Teil der Fangergebnisse in der Rur zur Untersuchung erhalten. Von Juli bis Dezember 1960 wurden insgesamt 5 Fischproben untersucht. Zur Untersuchung des Flußschlammes beschränkten wir uns auf 3 Entnahmestellen und zwar auf je eine oberhalb und unterhalb der Einmündung des Entwässerungsgrabens in die Rur und eine wegen der Nähe der holländischen Grenze bei Kempen. Mit den ersten Messungen von Schlammproben wurde im letzten Quartal 1960 begonnen.

## 2.242 Methodik

### a) Probennahme

Die untersuchten Wasserpflanzen wurden an den entsprechenden Entnahmestellen aus dem Boden gerissen, gründlich gespült und nach Arten getrennt zur Trocknung aufbewahrt. Wie bereits erwähnt, wurden Fische nicht selbst gefangen, da uns der Ruhrverband einen Teil seines Fischfanges zur Verfügung stellte. Die Schlammprobennahme erfolgte mit einem Schlammheber, wobei etwa 500 - 1000 g Schlamm an jeder Stelle entnommen wurden.

### b) Aufbereitung der Proben

#### 1. Wasserpflanzen

Nach gründlicher Lufttrocknung der Pflanzen erfolgte eine Bestimmung des Trockengewichtes. Die weitere Verarbeitung der Wasserpflanzen wie Veraschung, Aufschluß und chemischer Trennungsgang zur Sr-90-Bestimmung erfolgte nach den gleichen Methoden wie für Pflanzen allgemein beschrieben (vgl. 2.322).

---

(1) Dem Ruhrverband Essen sei an dieser Stelle für die großzügige Unterstützung besonders gedankt.

## 2. Fische

Die getöteten Tiere wurden im Sandbad und weiterhin im Trockenschrank bei  $110^{\circ}\text{C}$  getrocknet mit anschließender Bestimmung des Trockengewichtes. Eine Untersuchung einzelner Körperteile wurde wegen zu geringer Substanzmengen nicht vorgenommen, d.h. die Gesamtorganismen wurden trocken verascht (vorsichtiges Verbrennen der organischen Substanz) und die Asche bei  $600 - 800^{\circ}\text{C}$  im Muffelofen geglüht. Ein Teil der Asche wurde zur Herstellung der Präparate für die Gesamt- $\beta$ -Aktivität und die flammenphotometrische K-Bestimmung verwendet, der andere Teil wurde zur Sr-90-Bestimmung in  $\text{HNO}_3$  gelöst. Hieraus wurde das Sr als Phosphat gefällt; die Weiterbehandlung<sup>3</sup> dieser Fällung erfolgte wie bei den Pflanzenproben.

## 3. Schlamm

Die gesiebte Schlammprobe wurde getrocknet, die Trockensubstanz nochmals gesiebt und wie eine Bodenprobe weiterverarbeitet.

### c) Messung

Da, wie vorstehend beschrieben, die Probenaufbereitung zur Herstellung von Meßpräparaten der biologischen Substanz und des Schlammes mit den entsprechenden Methoden für Boden-, Bewuchs- und Milchproben im wesentlichen identisch ist, erfolgte auch die Aktivitätsbestimmung und die Kalibrierung der Meßgeräte nach dem gleichen Verfahren.

Die Gesamt- $\beta$ -Aktivität von Wasserpflanzen und Fischen wurde mit einem flachen "Pancake"-Zählrohr (Type Anton 1007 T) mit geringem Nulleffekt (etwa 6 Imp/min) gemessen. Die Sr-90-Aktivität dieser Proben und von Schlamm wurde mit einem Antikoinzidenz-Meßplatz bestimmt. (Nulleffekt etwa 1 Imp/min)

## 2.243 Meßergebnisse

Die Ergebnisse der Aktivitätsbestimmungen in Wasserpflanzen, Fischen und Schlamm wurden in den Tab. 25, 26 und 27 zusammengefaßt.

Tab.25

 $\beta$ -Aktivität von Wasserpflanzen

| Probenahme   |                          |          | Trocken-<br>gewicht | Asche-<br>gewicht | Ges- $\beta$ -<br>Akt | Rest- $\beta$ -<br>Akt | Sr-90-Akt.    |         |
|--|--------------------------|----------|---------------------|-------------------|-----------------------|------------------------|---------------|---------|
| Art  | Ort                      | Datum    | g                   | g                 | pc/g<br>Asche         | pc/g<br>Asche          | pc/g<br>Asche | pc/g Ca |
| Wasserpest<br>( <i>Elodea canadensis</i> )                     | Rur b. Unter-<br>maubach | 16. 8.60 | 172                 | 68,9              | 97                    | 68                     | 0,6           | 26      |
| Hahnenfuß<br>( <i>Ranunculus fluitans</i> )                    | Rur b. Unter-<br>maubach | 16. 8.60 | 148                 | 47,8              | 95                    | 68                     | 0,8           | 19      |
| Wasserstern<br>( <i>Callitriche</i> ; nicht<br>näher bestimmt) | Rur b. Unter-<br>maubach | 16. 8.60 | 28                  | 7,8               | 100                   | 75                     | -             | -       |
| Grünalge<br>( <i>Cladophora</i> )                              | Rur b. Unter-<br>maubach | 16. 8.60 | 161                 | 81,4              | 68                    | 55                     | 0,6           | 35      |
| Grünalge<br>( <i>Mougeotia</i> )                               | Rur b. Unter-<br>maubach | 16. 8.60 | 556                 | 299               | 70                    | 42                     | 0,8           | 20      |
| Laichkraut<br>( <i>Potamogeton pectina-<br/>tus</i> )          | Rur b. Jülich            | 24. 8.60 | 78                  | 23,2              | 58                    | 18                     | 0,4           | 25      |
| Laichkraut<br>( <i>Potam. pect.</i> )                          | Rur b. Jülich            | 7.10.60  | 32                  | 12,3              | 56                    | 33                     | 0,3           | 8       |
| Laichkraut<br>( <i>Potamogeton crispus</i> )                   | Rur b. Unter-<br>maubach | 7.10.60  | 31                  | 5,1               | 159                   | 79                     | -             | -       |
| Laichkraut<br>( <i>Potam. crisp.</i> )                         | Elle b. Jülich           | 17.10.60 | 35                  | 8,8               | 110                   | 61                     | -             | -       |

Tab.26

 $\beta$ -Aktivität von Fischen

| Probenahme   |                              |          | Trocken-<br>gewicht | Asche-<br>gewicht | Ges- $\beta$ -<br>Akt. | Rest- $\beta$ -<br>Akt. | Sr-90-Akt.    |         |
|--|------------------------------|----------|---------------------|-------------------|------------------------|-------------------------|---------------|---------|
| Art  | Ort                          | Datum    | g                   | g                 | pc/g<br>Asche          | pc/g<br>Asche           | pc/g<br>Asche | pc/g Ca |
| Forelle<br>( <i>Salmo trutta fario</i> )   | Rur b. Unter-<br>maubach     | 29. 7.60 | 435 <sup>1)</sup>   | 9,6               | 96                     | 15                      | 1,3           | 5,5     |
| Döbel<br>( <i>Squalius cephalus</i> )  | Rur b. Unter-<br>maubach     | 29. 7.60 | 763 <sup>1)</sup>   | 29,2              | 49                     | -                       | 1,1           | 3,4     |
| Plötze<br>( <i>Rutilus rutilus</i> )   | Rur b. Kempen                | 5. 8.60  | 105 <sup>1)</sup>   | 55,8              | 37                     | -                       | 0,8           | 2,5     |
| Schleie ( <i>Tinca tinca</i> )<br>Rotfeder 2) 2)<br>( <i>Scardinius erythroph-<br/>thalmus</i> ) | Rur b. Jülich                | 8.12.60  | 276                 | 29,4              | 47,7                   | 42                      | 0,8           | 2,6     |
| Karausche 2)<br>( <i>Carassius carassius</i> )   | Rur unterhalb<br>Wurmszufluß | 1.12.60  | 190                 | 24,7              | 41,5                   | 29                      | 0,5           | 1,6     |
| Plötze<br>( <i>Rutilus rutilus</i> )   | Rur oberhalb<br>Wurmszufluß  | 1.12.60  | 299                 | 33,7              | 48,4                   | 40                      | 0,7           | 2,3     |
| Döbel<br>( <i>Squalius cephalus</i> )  | Elle b. Jülich               | 15.12.60 | 205                 | 23,8              | 53                     | 39                      | 0,5           | 1,9     |

1) Frischgewicht

2) Mischproben

Tab.27

Sr-90-Aktivität von Rurschlamm

| Entnahme    |          | Sr-90-Aktivität      |
|-------------|----------|----------------------|
| Ort         | Datum    | pc/g Trockensubstanz |
| Krauthausen | 4.11.60  | 0,2                  |
| Jülich      | 4.11.60  | 0,7                  |
| Kempen      | 4.11.60  | 0,2                  |
| Krauthausen | 23.12.60 | 0,2                  |
| Jülich      | 23.12.60 | 0,2                  |

## 2.244 Diskussion

Da die Verarbeitung und Messung der Proben nach den Verfahren für die Untersuchung von Böden, Pflanzen und Milch durchgeführt wurde, gelten für die Fehlerabschätzung der Meßwerte in den Tab. 25, 26 und 27 die gleichen Überlegungen wie dort.

Wie bereits im Abschnitt 2.241 erwähnt wurde, handelt es sich bei den im Jahre 1960 durchgeführten Untersuchungen von biologischen Objekten und Schlamm der Rur um eine Vorversuchsreihe, die noch nicht den Charakter einer routinemäßigen Überwachung trägt. Die erzielten Meßergebnisse sind aber mit den Ergebnissen anderer Stellen durchaus vergleichbar, obwohl zum Teil wesentliche Unterschiede in den Aufbereitungsmethoden vorliegen. Um in Zukunft eine exakte Vergleichbarkeit unserer Ergebnisse mit denen der unabhängigen Überwachungsstellen zu erzielen, werden im Jahre 1961 die Aufbereitungsverfahren des Chemisch-Biologischen Laboratoriums des Ruhrverbandes Essen übernommen.

Grob gesehen soll sich unsere künftige Überwachung auf eine Meßstelle oberhalb und eine unterhalb der Einmündung des Abwasserkanales beschränken, wobei die genaue Festlegung der jeweiligen Probennahmeorte teilweise von der Art des Meßobjektes abhängig ist. Schlammproben werden z.B. bei Krauthausen und Jülich entnommen. An den gleichen Stellen sollen auch Plankton/Seston-Proben untersucht werden. Da aber an den genannten Orten die Rur durch Zellulosefasern und ähnliches sehr stark verunreinigt ist, erfolgt eine weitere Planktonentnahme bei Untermaubach, um zum Vergleich noch ein nahezu reines Flußplankton zu haben.

Zur Untersuchung von Wasserpflanzen wählten wir zwei Entnahmestellen, an denen mit Sicherheit gleiche Pflanzenarten anzutreffen sind. Wir haben uns auf die Pflanzen Fontinalis und Potamogeton crispus beschränkt, die in Untermuibach in großer Menge, in Jülich ausreichend, in Krauthausen aber nicht anzutreffen sind, so daß der letztgenannte Ort für eine Vergleichsprobennahme entfällt.

Für eine künftige Untersuchung von Fischproben bleibt es bei der zwischen dem Ruhrverband Essen und uns geschlossenen Vereinbarung, nach welcher uns ein Teil des Fanges zur physikalischen Auswertung überlassen wird.

### 2.3 Überwachung von Boden, Bewuchs und landwirtschaftlichen Produkten

#### 2.31 Aktivität von Acker-, Weide- und Waldboden

##### 2.311 Grundlagen

Die Radioaktivität des Bodens setzt sich aus zwei Komponenten zusammen und zwar aus der natürlich vorhandenen und der dem Boden zugeführten künstlichen Radioaktivität.

Die natürliche Radioaktivität rührt im wesentlichen her vom Gehalt des Bodens an U-238, Th-232 und K-40. Von untergeordneter Bedeutung sind das U-235, das im natürlichen Uran mit einer Häufigkeit von 0,7 Gew.-% vertreten ist, sowie langlebige Isotope einiger seltener Elemente wie V, Rb, In, La, Ce, Nd, Sm, Lu, Ta, W, Re, Pt, Pb und Bi.

In der Literatur werden für die oben genannten Nuklide folgende Gehalte im Boden angegeben:

|        |      |                   |            |
|--------|------|-------------------|------------|
| U-238  | etwa | $3 \cdot 10^{-6}$ | g/g Boden  |
| Th-232 | etwa | $1 \cdot 10^{-5}$ | g/g Boden  |
| K-40   | etwa | $2 \cdot 10^{-6}$ | g/g Boden. |

Infolge der sehr langen Halbwertszeiten von U-238 und Th-232 kann man deren Aktivitäten als konstant ansehen, wenn man die Proben immer an der selben Stelle entnimmt. Die von K-40 ausgehende radioaktive Strahlung im Boden ist trotz der langen Halbwertszeit nicht als gleichbleibend anzu-

nehmen, da der Kaliumgehalt des Bodens z.B. durch Düngung schwanken kann. Deshalb ist es erforderlich, den Kaliumgehalt des Bodens zu berücksichtigen. Dies geschieht entweder durch Bestimmung des Kaliumgehaltes und Subtraktion der zugehörigen K-40-Aktivität von der Gesamtktivität, oder in dem man dafür sorgt, daß die auf Aktivität zu untersuchende Probe kein Kalium enthält, was durch Anwendung geeigneter chemischer Methoden erreicht werden kann.

Die künstliche Radioaktivität im Boden ist Schwankungen unterworfen. Sie stammt hauptsächlich aus Atombombenversuchen und gelangt im wesentlichen mit dem Niederschlag auf den Boden. Außerdem sind gegebenenfalls radioaktive Immissionen in der Umgebung kerntechnischer Anlagen zu berücksichtigen.

Zu den Spaltprodukten, die bei Kernreaktionen entstehen, gehören u.a. Cs-137, Sr-90 / Y-90, Ba-140 / La-140, Ce-144 / Pr-144, Zr-95 / Nb-95, Ru-106 / Rh-106. Von diesen Nukliden nehmen das Sr-90 und das Cs-137 insofern eine Sonderstellung ein, da sie  $\beta$ -Strahler mit langer Halbwertszeit (Sr-90 :  $T = 28$  a, Cs-137 :  $T = 30$  a) sind. Sie werden aus dem Boden von den Pflanzen teilweise aufgenommen, können entweder direkt oder über das Tier (Fleisch, Milch) in den menschlichen Körper gelangen und dort biologische Schädigungen verursachen. Das Sr-90 lagert sich z.B. wegen seiner Ähnlichkeit mit Ca bevorzugt im Knochen (kritisches Organ) ab und kann schädigend auf die blutbildenden Organe (Knochenmark) einwirken, während das Cs-137 sich als Alkalimetall mehr oder weniger gleichmäßig im ganzen Körper verteilt (kritisches Organ : Gesamtkörper und Gonaden).

Es ist deshalb sinnvoll, entweder routinemäßig oder beim Verdacht einer Kontamination die Menge derartiger Nuklide im Boden zu bestimmen.

## 2.312 Methodik

Wie aus Tab.3 hervorgeht, erstreckte sich die Bodenuntersuchung im Jahre 1960 auf die Messung der Brutto- $\gamma$ -Aktivität, der  $\beta$ -Aktivität der Erdalkalicarbonatgruppe, im folgenden mit  $\beta$ -Aktivität der Erdalkalien bezeichnet, und der Sr-90 Aktivität.

Zur Messung der Brutto- $\gamma$ -Aktivität verwenden wir den Szintillationsmeßkopf FH 488 mit NaJ (Tl)-Kristall hinter 10 cm Blei. Die getrocknete und gesiebte Bodenprobe wird in eine Ringschale gefüllt und dadurch in günstiger Geometrie um den Kristall angeordnet. Der Kristall ist von Aluminium umgeben, so daß keine  $\beta$ -Teilchen gezählt werden.

Die  $\beta$ -Aktivität des Bodens stammt im wesentlichen von künstlich radioaktiven Elementen und vom K-40. Es ist also mit sehr geringen Aktivitäten zu rechnen. Deshalb sind Anreicherungsverfahren, die im Falle von Bodenproben nur chemisch erfolgen können, unumgänglich. Der Anreicherungs Vorgang soll reproduzierbar und das resultierende Meßpräparat von definierter Zusammensetzung sein. Das ist der Fall, wenn man z.B. die Erdalkaligruppe als Carbonate abtrennt und zur Messung bringt. Dieser Weg hat den Vorteil, daß man von den Carbonaten ausgehend die Untersuchungen auf den Sr-90-Gehalt ausdehnen kann und außerdem den K-40-Gehalt nicht zu berücksichtigen braucht. Allerdings wird auf diese Weise nur eine kleine Nuklidgruppe erfaßt, die neben Sr-90 und Ba-140 auch natürlich radioaktive Nuklide (Ra-226 und Folgeprodukte) enthält.

Zur chemischen Analyse wird im wesentlichen die vom Sonderausschuß Radioaktivität überarbeitete Vorschrift von BRYANT u. Mitarbeiter herangezogen (49).

Der chemischen Analyse geht eine mechanische Aufbereitung der Bodenproben voraus, sodaß sich der gesamte Aufbereitungsgang folgendermaßen gestaltet:

#### Mechanische Aufbereitung

Der Boden wird mit einem geeigneten Gerät dem zu überwachenden Gelände (Acker, Wiese oder Wald) entnommen. Der Probennehmer besteht aus einem 90 cm langen Stahlrohr, das am Ende geschärft ist. Sein Durchmesser beträgt 50 cm, entsprechend einer erfaßten Fläche von ca.  $20 \text{ cm}^2$ . Es werden jeweils 20 Einstiche gemacht, so daß eine Gesamtfläche von  $400 \text{ cm}^2$  erfaßt wird.

In Anlehnung an die übliche Praxis werden die Proben bei Ackerböden bis zu einer Tiefe von 20 cm, bei Wiesen- und Waldböden bis zu einer Tiefe

von 5 cm entnommen.

Die Böden werden an der Luft getrocknet und danach in einer Kugelmühle zerkleinert. Anschließend wird das Mahlgut durch ein Sieb von 2 mm Maschenweite gegeben.

Um eine gute Durchschnittsprobe zu erhalten, wird der gesiebte Boden durch "Vierteln" gemischt. Von ca. 1 kg der Durchschnittsprobe werden 200 g chemisch aufbereitet und der Rest für spätere Kontrollen aufbewahrt.

### Chemische Analyse

200 g der lufttrockenen und gesiebten Bodenprobe werden zur Zerstörung der organischen Substanz 1 bis 2 Stunden im Muffelofen auf 600° C erhitzt.

Zu dem Boden gibt man 125 ml Wasser, 200 mg Strontiumträger und versetzt mit 125 ml konzentrierter Salzsäure. Die Mischung bleibt unter gelegentlichem Umrühren 8 Stunden stehen, wird anschließend auf einer Nutsche abgesaugt und mit 200 ml Wasser nachgewaschen. Der extrahierte Boden wird in das anfänglich gebrauchte Becherglas zurückgebracht, mit ca. 125 ml Wasser und 125 ml konzentrierter Salzsäure versetzt und nochmals unter gelegentlichem Umrühren 8 Stunden stehen gelassen. Nun wird wieder abgesaugt und der extrahierte Bodenrückstand verworfen.

Die vereinigten Filtrate werden mit 10 ml Ammonacetatlösung (3 m) versetzt und je nach Erfordernis werden 30 - 50 g Oxalsäure zugegeben. Es wird erhitzt bis die Oxalsäure gelöst ist und mit 25 %igem Ammoniak  $p_H=4$  eingestellt. Sollte hierbei ein rotbrauner Niederschlag entstehen, so ist solange Oxalsäure zuzugeben, bis dieser wieder verschwunden ist.

Nach der Fällung läßt man 4 Stunden bei 60° stehen und filtriert den Niederschlag ab.

Der Niederschlag wird mit Salzsäure (1:1) in der Wärme gelöst, nach Zugabe von ca. 10 g Oxalsäure die Fällung mit  $NH_3$  bei  $p_H=4$  wiederholt, die Oxalate auf einem Filter gesammelt und mit Wasser nachgewaschen. Das Filtrat wird verworfen.



Das Filter mit dem Oxalatniederschlag gibt man in einen geräumigen Tiegel (oder eine kleine Porzellanschale), trocknet bei  $105^{\circ}$  und glüht anschließend mindestens 1 Stunde bei  $800^{\circ}$  im Muffelofen.

Die geglühten Oxyde bringt man mit Salpetersäure in Lösung. Das  $\text{CO}_2$  wird verkocht und die Lösung mit Wasser auf 100 ml aufgefüllt. Dann wird das Eisen und Aluminium aus der heißen Lösung mit Ammoniak gefällt. (Es zeigt sich, daß gelegentlich nach dem Abfiltrieren eine Braunfärbung des Filtrates auftritt. Wenn man nach der Fällung mit Ammoniak und Absitzenlassen des Niederschlages nochmals längere Zeit kocht, bleibt die Lösung auch nach dem Abfiltrieren klar und farblos). Das Filtrat wird zum Sieden erhitzt und mit gesättigter Ammoncarbonatlösung Calcium, Strontium, Barium und Radium gefällt. Die Carbonate werden in einem Goochtiegel gesammelt, mit wenig Wasser und Methanol nachgewaschen und die Ausbeute an Gesamtcarbonaten bestimmt.

Die Gesamtcarbonatausbeute kann man mit genügender Genauigkeit unter Berücksichtigung der zugegebenen 200 mg Sr auf den Ca-Gehalt des Bodens umrechnen, da der Boden keine nennenswerten inaktiven Sr-Mengen enthält.

Etwa 250 - 500 mg des Carbonatgemisches werden in ein Meßschälchen genau eingewogen. Die  $\beta$ -Aktivität des Gesamtcarbonatniederschlages wird mit einem Endfensterzählrohr mit einem Nulleffekt von 6 Imp/min (Pancake-Zählrohr 1007 T, Fensterdicke  $< 4 \text{ mg/cm}^2$ ) und einem Zählgerät FH 90 gemessen. Der Wirkungsgrad der Zählordnung und die Selbstabsorptionskurve wurden mit Sr-90/ $\gamma$ -90-Präparaten ermittelt und die Meßergebnisse auf diese Weise korrigiert.

Ausgehend vom Erdalkali-Niederschlag wird die Sr-90-Bestimmung wie folgt ausgeführt:

Die gesamte Erdalkalicarbonatmenge wird in ein 50 ml-Zentrifugenglas genau eingewogen. Das Carbonatgemisch wird in wenig Salpetersäure  $(2 + 7)^1$  gelöst und der Lösung 10 mg Bariumträger zugefügt. Zum Lösen der unterschiedlichen Mengen des Carbonatgemisches werden folgende Mengen an Salpetersäure  $(2 + 7)$  benötigt:

<sup>1</sup>) 2 Vol.-Teile konzentrierte Salpetersäure + 7 Vol.-Teile Wasser

|         |                |
|---------|----------------|
| 1 - 3 g | ca. 5 - 11 ml  |
| 3 - 5 g | ca. 11 - 18 ml |
| 5 - 7 g | ca. 18 - 25 ml |

Ist die Menge des Carbonatgemisches größer als 3 g, so muß ein 100 ml-Zentrifugenglas benutzt werden. Es wird langsam unter Kühlen und Umrühren die doppelte Menge an rauchender Salpetersäure zugegeben und eine halbe Stunde unter gelegentlichem Umrühren mit Eis gekühlt. Nun wird zentrifugiert, die überstehende Lösung vorsichtig abgehebert und der Niederschlag in 10 ml Wasser gelöst. Die Strontium-Fällung mit rauchender Salpetersäure wird wiederholt. Bei 3 - 5 g GesamtCarbonat ist die Fällung ein drittes Mal und bei 5 - 7 g insgesamt fünfmal zu wiederholen, da sich sonst noch  $\text{CaCO}_3$  im Niederschlag befindet.

Der Rückstand (Strontium-, Barium- und Radiumnitrat) wird in 10 ml Wasser gelöst und in ein Becherglas überführt. Nun wird 1 Tropfen Methylrot zugesetzt, die überschüssige Säure mit Ammoniak (2 + 5) neutralisiert und 1 ml Essigsäure (1 + 2) und 2 ml Ammonacetatlösung (230 g/l) zugefügt. Die Lösung wird auf 30 ml verdünnt und im Wasserbad erhitzt. Nach Zusatz von Natriumchromatlösung wird die Lösung noch weitere 5 Minuten erhitzt und der Niederschlag (Ba-Chromat) abfiltriert.

Das Filtrat wird erhitzt, erneut 10 mg Bariumträger zugegeben, sofort gerührt, weitere 5 Minuten erhitzt und filtriert. Die beiden Niederschläge werden verworfen. (Die Chromat-Niederschläge können gegebenenfalls gemessen werden. Dabei erfaßt man Ba-140 (12,8 a), Ra-D (19,4 a) und Ra-226 (1620 a)).

Das Filtrat wird mit konzentriertem Ammoniak alkalisch gemacht, erhitzt und mit konz. Ammoniumcarbonatlösung das Strontium gefällt. Das Filtrat wird verworfen.

Der Carbonat-Niederschlag wird in wenig Salpetersäure (1 + 7) gelöst und 3 Tropfen Wasserstoffperoxyd (30 %ig) sowie 5 mg Yttriumträger zugegeben. Man erhitzt, um das  $\text{CO}_2$  zu entfernen, verdünnt mit Wasser und fällt das Yttrium in der Hitze mit Ammoniak (1 + 1).

Der Niederschlag wird in wenig Salpetersäure (1 + 7) gelöst und die Fällung wiederholt. Der Filterrückstand wird verworfen, die vereinigten Filtrate mit Salpetersäure (2 + 5) angesäuert (pH=1) und mit 10 mg Yttriumträger versetzt.

Zwecks Einstellung des radioaktiven Gleichgewichtes (Sr-90/Y-90) wird die Lösung mindestens 14 Tage in Polyäthylenflaschen aufbewahrt.

Das Filtrat (Gleichgewichtslösung) wird erhitzt und das Yttrium mit Ammoniak (1 + 1) gefällt. Der Niederschlag wird in wenig Salpetersäure (2 + 5) gelöst, auf etwa 10 - 15 ml verdünnt und nochmals mit Ammoniak gefällt. Die Filtrate werden vereinigt. Die Zeit der ersten Fällung wird notiert. Die vereinigten Filtrate werden für die Strontium-Ausbeutebestimmung aufbewahrt.

Der Niederschlag ( $Y(OH)_3$ ) wird in möglichst wenig Salpetersäure (2 + 5) gelöst und die Lösung erhitzt. Nach Zugabe von Oxalsäure wird noch weiter erhitzt, um so einen möglichst körnigen Yttriumoxalat-Niederschlag zu erhalten.

Von dem Yttrium-Niederschlag wird ein Meßpräparat hergestellt und in einer Zählordnung mit geringstem Nulleffekt (Tracerlab-Antikoinzidenzanlage CE-14 L) gemessen.

Aus dem Sr-haltigen Filtrat wird das Sr als Sulfat ausgefällt und die Sr-Ausbeute berechnet. Mit diesem Wert wird die gemessene Y-90 (= Sr-90-) Aktivität korrigiert. Eine zweite Korrektur wird durch die Ermittlung der Y-Ausbeute angebracht. Das Y-Oxalat (Meßpräparat) wird zu dem Zweck zum Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> verglüht. Schließlich wird durch Eichung der Apparatur mit bekannten Y-90-Präparaten die Zählausbeute der Apparatur ermittelt.

Zur Bestimmung von Kalium im Boden wird folgendermaßen verfahren:

Etwa 1 g des trockenen und gesiebten Bodens wird mit  $NH_4Cl$  und  $CaCO_3$  zusammen erhitzt und die Masse mit Wasser ausgelaugt (Aufschluß nach SMITH<sup>4</sup>). Nach Abtrennung der Sulfate und des Calciums mit Ba-Ionen bzw. Ammoniumcarbonat wird das im Filtrat befindliche Kalium durch Fällung mit Natriumtetraphenylborat (Kalignost) gravimetrisch bestimmt. Analog wird bei der Kaliumbestimmung in pflanzlichem und tierischem Material verfahren. Ein

Aufschluß ist hier jedoch nicht erforderlich.

Für die Auswertung der Zählergebnisse wurden folgende Formeln verwendet:

Gesamt- $\gamma$ -Aktivität des Bodens

$$A = \frac{4,5}{\eta G} (n - n_0) \quad \text{pc/g} \quad (31)$$

$\beta$ -Aktivität des Bodens (Erdalkalicarbonatgruppe)

$$A = \frac{56 G_1 G_2}{G_3} f_{\text{Sr}} (n - n_0) \quad \text{mc/km}^2 \quad (32)$$

Sr-90-Aktivität des Bodens

Spezifische Aktivität bezogen auf Fläche:

$$A = \frac{0,056 G_1 G_2}{G_4} f_Y k_{\text{Sr}} k_Y A_0 \quad \text{mc/km}^2 \quad (33)$$

Spezifische Aktivität bezogen auf g Boden:

$$A = \frac{G_2}{444 G_4} f_Y k_{\text{Sr}} k_Y A_0 \quad \text{pc/g} \quad (34)$$

Spezifische Aktivität bezogen auf g Calcium:

$$A = \frac{1,13 G_2}{G_4 (G_2 - 1,68 a_{\text{Sr}})} f_Y k_{\text{Sr}} k_Y A_0 \quad \text{pc/g Ca} \quad (35)$$

In den Formeln bedeuten:

- $G$  = zur Messung verwendete Bodenmenge in kg
- $G_1$  = Gewicht der Gesamtprobe von 400 cm<sup>2</sup> Fläche in kg
- $G_2$  = Gewicht des Carbonatniederschlags von 200 g Boden in g
- $G_3$  = Gewicht des Meßpräparates in mg
- $\eta$  = Wirkungsgrad der Zählordnung (durch Ausmessung von Boden/KCl-Gemischen bei verschiedenen Füllhöhen ermittelt)
- $a_{\text{Sr}}$  = Sr-Trägermenge in g
- $a_Y$  = Y-Trägermenge in g
- $k_{\text{Sr}}$  =  $\frac{a_{\text{Sr}}}{g_{\text{Sr}} \text{ gef.}}$  Ausbeutekorrektur-Faktor für Sr
- $k_Y$  =  $\frac{a_Y}{g_Y \text{ gef.}}$  Ausbeutekorrektur-Faktor für Y
- $f_{\text{Sr}}$  = Korrekturfaktor aus der Eichung mit Sr-90/Y-90-Gemisch
- $f_Y$  = Korrekturfaktor aus der Eichung mit Y-90
- $n - n_0$  = Nettoimpulsrate
- $A_0$  = Aktivität des Präparates zur Zeit  $t = 0$  (d.i. Zeit der Fällung) in Imp/min

2.313 Meßergebnisse

In der Tabelle 28 sind die Meßergebnisse der Bodenuntersuchungen zusammengestellt.

Tab.28  
Aktivität des Bodens

| Ort                      | Monat    | Brutto- $\beta$ -Akt.<br>pc/g | $\beta$ -Akt.d. $E_{\beta}d_{alk}$<br>mc/km <sup>2</sup> | Sr-90-Akt.<br>mc/km <sup>2</sup> |
|--------------------------|----------|-------------------------------|--|----------------------------------|
| Gut Lorsbeck (Acker)     | Januar   | 5,6                           | 11,9   | 13,6                             |
|                          | Februar  | 5,7                           | 3,8  | 3,3                              |
|                          | März     | 5,3                           | 8,6  | 6,4                              |
|                          | April    | 5,5                           | 19,7   | 9,9                              |
|                          | Juni     | 5,4                           | 17,4   | 12,1                             |
|                          | August   | 5,4                           | 45,0   | 4,2                              |
|                          | Oktober  | 5,9                           | 9,0  | 4,2                              |
|                          | Dezember | 4,9                           | 8,3  | 2,0                              |
| Haus Lindenberg (Weide)  | Januar   | 6,8                           | 10,5   | 15,4                             |
|                          | Februar  | 5,8                           | 10,4   | 11,2                             |
|                          | März     | 5,3                           | -  | 11,5                             |
|                          | April    | 5,4                           | -  | 14,1                             |
|                          | Juni     | 4,7                           | 17,6   | 15,3                             |
|                          | August   | 4,5                           | -  | 7,1                              |
|                          | Oktober  | 5,1                           | 11,3   | 6,8                              |
|                          | Dezember | 4,9                           | 18,5   | 7,5                              |
| Forst Stetternich (Wald) | Januar   | 6,3                           | 15,7   | 10,3                             |
|                          | Februar  | 5,9                           | 11,6   | 13,5                             |
|                          | März     | 5,4                           | 13,8   | 11,6                             |
|                          | April    | 5,4                           | 11,6   | 13,4                             |
|                          | Juni     | 5,6                           | 18,0   | 13,2                             |
|                          | August   | 5,1                           | 8,7  | 9,6                              |
|                          | Oktober  | 6,1                           | 15,3   | 9,8                              |
|                          | Dezember | 4,4                           | 8,9  | 7,8                              |

2.314 Diskussion

Die Ergebnisse der bisher veröffentlichten Untersuchungen über die Kontamination des Bodens in der Bundesrepublik sind in Tab.29 zusammengestellt. Die Werte gehen auf Veröffentlichungen von E. WELTE und A. SITTKUS (50) sowie von E. GROSS (51) und auf eigene Messungen zurück.

Tab.29

Sr-90-Aktivitäten von Böden in der Bundesrepublik

| Zeit | nähere Angaben  | $\frac{\text{mc}}{\text{km}^2}$ |
|------|---|---------------------------------|
| 1957 | Dauerweide mit Grasvegetation (10 cm Einstichtiefe)<br>Mittel von 22 Orten      | 5,1                             |
| 1957 | 5 cm Einstichtiefe, Mittel von 10 Orten   | 8,1                             |
| 1957 | Karlsruhe Mittel aus 18 Probestellen  | 6,9                             |
| 1958 | Karlsruhe Mittel aus 18 Probestellen  | 15,7                            |
| 1959 | Frankfurt (100 km Umkreis) Mittelwerte von 22 Stellen                           | 12,1                            |
| 1959 | Bundesrepublik Mittelwert aus 17 Messungen<br>(54,2 - 47,5 $^{\circ}\text{N}$ ) | 10,6                            |
| 1959 | Jülich und nähere Umgebung, Mittelwert aus 9 Messungen<br>(Oktober - Dezember)  | 13,5                            |

Die aus der Atmosphäre auf den Boden gelangenden radioaktiven Partikeln werden in den oberen Bodenschichten akkumuliert. Man nimmt an, daß die unlöslichen Partikeln durch einen Filtereffekt an der weiteren Wanderung im Boden gehindert und die löslichen Anteile durch die Fähigkeit der Tonminerale, als Ionenaustauscher zu wirken, bereits in den oberen Schichten festgehalten werden. Unter dieser Annahme ist die Fallout-Aktivität einer Bodenprobe von der Einstichtiefe, wenn diese über eine Mindesteinstichtiefe hinausgeht, unabhängig. Als Mindesteinstichtiefe werden allgemein 5 cm angesehen. Nur bei Ackerböden, die mit dem Pflug bearbeitet sind, ist 20 cm tief zu gehen.

Die Werte der  $\gamma$ -Aktivitäten sind ein Maß für alle im Boden vorhandenen  $\gamma$ -Strahler, deren  $\gamma$ -Energie die Energie-Empfindlichkeitsgrenze des Szintillators überschreiten. Die Messungen haben den Sinn, eine deutliche Erhöhung der  $\gamma$ -Aktivität der Erdoberfläche schnell zu erkennen. Da zur Messung keinerlei zeitraubende chemische Analyse der Proben erforderlich ist, stehen die Meßwerte nach kurzer Zeit zur Verfügung. Die Werte sind sehr komplexer Natur, da die  $\gamma$ -Aktivität des Bodens von einer Vielzahl von Nukliden herrührt. Zur  $\gamma$ -Aktivität wird von den Nukliden der natürlichen Zerfallreihen und vom K-40 am meisten beigetragen. Wenn man die im Abschnitt 2.311 angegebenen Gehalte des Bodens an U-238, Th-232 und K-40 zugrundelegt und an Hand der Zerfallsschemata der einzelnen Glieder

der Zerfallsreihen die Zahl der pro U-238-, Th-232-bzw. K-40-Zerfall emittierten  $\gamma$ -Quanten ermittelt, dann ergibt eine sehr grobe Abschätzung eine natürliche  $\gamma$ -Aktivität von größenordnungsmäßig 1 pc/g Boden in Übereinstimmung mit den von uns gemessenen Werten.

Das Ergebnis dieser theoretischen Überlegungen, daß die  $\gamma$ -Aktivität des Bodens weitgehend von der natürlich vorhandenen herrührt, wird von uns auch experimentell bestätigt. Die gefundenen spez.  $\gamma$ -Aktivitäten (pc/g) sind praktisch konstant und unabhängig von der Einstichtiefe (bei Ackerboden 20 cm, bei Weide- und Waldboden 5 cm). Zum gleichen Ergebnis kommt man aufgrund experimenteller Daten bei einer anderen Betrachtungsweise. Wenn man die  $\gamma$ -Aktivitäten der Bodenproben in Flächenaktivitäten mc/km<sup>2</sup> angibt, dann ergibt sich eine Abhängigkeit von der Einstichtiefe, und zwar verhalten sich die Flächenaktivitäten wie die Einstichtiefen (s.Tab.30).

Tab.30

Flächenaktivität in Abhängigkeit von der Einstichtiefe

| Probe | Einstichtiefe | $\gamma$ -Aktivität<br>mc/km <sup>2</sup> | Mittelwerte<br>mc/km <sup>2</sup> |
|-------|---------------|---|-----------------------------------|
| 1     | 20            | 10,9                                      | 10,1                              |
| 2     | 20            | 9,0                                       |                                   |
| 3     | 20            | 8,5                                       |                                   |
| 4     | 20            | 9,6                                       |                                   |
| 5     | 20            | 11,6                                      |                                   |
| 6     | 20            | 11,2                                      |                                   |
| 7     | 5             | 2,3                                       | 2,5                               |
| 8     | 5             | 2,6                                       |                                   |
| 9     | 5             | 2,9                                       |                                   |
| 10    | 5             | 1,7                                       |                                   |
| 11    | 5             | 2,9                                       |                                   |

Auf die oben beschriebene Weise können schon Erhöhungen der  $\gamma$ -Aktivität im Boden um den Faktor 2 schnell und sicher erkannt werden. Von besonderer Bedeutung werden die Brutto- $\gamma$ -Messungen also zwecks Bestimmung des Kontaminationsgrades des Bodens und gegebenenfalls des Bewuchses z.B. mit J-131 nach einem evtl. Reaktorunfall sein. Man wird in einem solchen Falle durch

Einholen einer größeren Anzahl von Proben aus der näheren und fernerer Umgebung der Reaktoren relativ schnell eine Übersicht über die Verteilung derartiger Strahler bekommen.

Die Werte der  $\beta$ -Aktivitäten der Erdalkalien sind ebenfalls zusammengesetzter Natur. Sie geben die Summe der Aktivitäten der Sr- und Ba-Isotope und der Ra-226-Folgeprodukte an. Der Informationswert dieser Meßergebnisse für die Überwachung einer Reaktor Umgebung wird durch die Gegenwart von natürlichen  $\beta$ -Strahlern der Ra-226-Reihe eingeengt, besonders dann, wenn der Aktivitätsanteil der Ra-Folgeprodukte an der  $\beta$ -Aktivität der Erdalkalien hoch ist. Nach den vorliegenden Messungen aus 1959 und 1960 entfällt im Durchschnitt etwa 60 % der  $\beta$ -Aktivität auf Sr-90 und der Rest auf Ba-Isotope und Ra-226-Folgeprodukte; das Verhältnis der  $\beta$ -Aktivität zur Sr-90-Aktivität beträgt durchschnittlich entsprechend 1,7. Der Ba-140-Anteil an der  $\beta$ -Aktivität wird nur in jungen Spaltproduktgemischen (jünger als 4 Monate) einen meßbaren Wert beitragen.

Die Ergebnisse der von uns durchgeführten Sr-90-Messungen sind in der Abb.22 wiedergegeben.

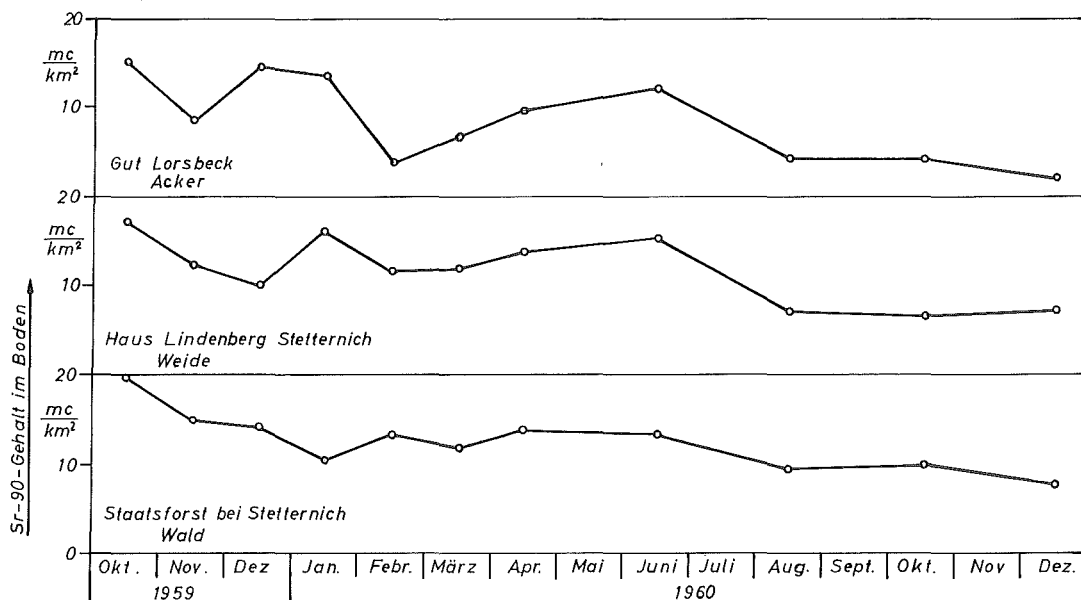


Abb.22. Kontamination des Bodens mit Sr-90 in  $\text{mc/km}^2$



Die Abnahme der Sr-90-Aktivität der Bodenoberfläche ließe sich auf einen Auswascheffekt in der oberen Bodenschicht zurückführen. Seit Beendigung der Atombombenversuchsreihen im Oktober 1958 erhält das atmosphärische Reservoir keinen Zuwachs an Sr-90-mehr. Die Sr-90-Menge in der Atmosphäre nimmt aufgrund der Halbwertszeit und der Ausscheidungsvorgänge (Sedimentation etc.) ab. Nach Berechnung von W. KLUG (52) war mit einem Sr-90-Ausfall im Jahresdurchschnitt für  $50^{\circ}$  N im Jahre 1960 von  $0,6 \text{ mc/km}^2$  pro Jahr zu rechnen. Hierbei sind neue umfassende amerikanische Untersuchungen über die mittlere Verweilzeit des Sr-90 und die Sr-90-Reservoirmengen in der Atmosphäre zugrundegelegt worden. Die mittlere Verweilzeit beträgt danach 1 Jahr und das Sr-90-Reservoir 1958 1 Mc. Die jährliche Sr-90-Zunahme von  $0,6 \text{ mc/km}^2$  können wir nicht feststellen, da sie innerhalb der Fehlergrenze unserer Messungen liegt. Der von uns gefundene Abfall der Sr-90-Aktivität im Boden steht zu den obigen Angaben nicht im Widerspruch. Eine meßbare Zunahme der Sr-90-Aktivität durch Fallout-Vorgänge ist nicht mehr zu erwarten. Der gemessene Aktivitätsabfall steht andererseits nicht mit der Annahme in Einklang, daß der Boden als Ionenaustauscher wirkt und auf diese Weise das Sr-90 in den oberen Bodenschichten festhält. Ob eine solche Austauschwirkung für die von uns untersuchten Bodensorten ausgeübt wird, werden wir anhand von Laborversuchen klären.

Für die Abschätzung der Fehler gelten folgende Überlegungen.

#### Brutto- $\gamma$ -Aktivität

Für die Ermittlung der  $\gamma$ -Aktivitäten wurden 6 000 Impulse gemessen; der Nulleffekt der Apparatur wurde mit einer Impulszahl von 2 000 ermittelt. Unter Berücksichtigung von Nulleffekt und den zugehörigen Meßzeiten von Null- und Gesamteffekt kommt man nach Formel (25) zu einem mittleren relativen Fehler der Meßwerte von  $\pm 2 \%$ . In das Endergebnis gehen dann noch die Wägefehler und der Fehler des Eichfaktors ein. Die Wägefehler sind zu vernachlässigen ( $< 0,1 \%$ ), der Eichfaktor wurde mit einem Fehler von  $\pm 2 \%$  bestimmt. Daraus ergibt sich ein Gesamtfehler für die Einzelwerte der Tabelle von  $\pm 3 \%$ .

#### Gesamt- $\beta$ -Aktivitäten

Bei einer Registrierung von 400 Impulsen für jede Messung ergeben sich

unter Verwendung von Formel (25) mittlere Fehler der Meßwerte, die im allgemeinen maximal bei 20 % liegen. Bei einigen sehr schwachen Präparaten stieg der Fehler über 20 %. Außer diesem statistischen Zählfehler ist noch der durch den Analysengang hinzukommende Fehler von Bedeutung. Nach Ergebnissen systematischer Untersuchungen liegt der Gesamtfehler der  $\beta$ -Aktivitätsmessungen bei  $\pm 40$  %.

#### Sr-90-Aktivitäten

Der mittlere statistische Zählfehler der Sr-90-Messungen liegt bei  $\pm 10$  %; der Gesamtfehler der Sr-90-Messungen bei  $\pm 20$  %. Dies fanden wir anhand von 10 Vergleichsmessungen an einer homogenen Bodenmischung.

### 2.32 Aktivität von Gras

#### 2.321 Grundlagen

Die Pflanzen können die aus dem Fallout stammenden radioaktiven Nuklide auf zwei Wegen aufnehmen, einerseits über die Wurzeln aus dem Boden und andererseits über oberirdische Pflanzenteile aus der Luft. Nach R. SCOTT RUSSELL (53) ist es von Nuklid zu Nuklid verschieden, ob die Kontamination über den einen oder den anderen Weg erfolgt. Das Cs-137 wird z. B. überwiegend über oberirdische Pflanzenteile aufgenommen, während das Sr-90 sowohl über oberirdische Teile als auch über die Wurzeln in die Pflanze gelangt.

Um eine Übersicht über den Kontaminationsgrad des Bewuchses in der Umgebung der Kernforschungsanlage zu erhalten, wurden Grasproben von Weideflächen untersucht. Die Proben entstammen Dauerweiden vom Haus Lindenberg bei Stetternich, Kirchholzer Hof und Gut Winterbach.

#### 2.322 Methodik

Das frische Gras wird zunächst getrocknet und verascht. Die Asche wird dann in Meßschälchen gegeben und die  $\beta$ -Aktivität mit einem Endfensterzählrohr (Anton 1007 T) bestimmt. Nach Bestimmung des Kaliumgehaltes der Asche kann man die Rest- $\beta$ -Aktivität berechnen. Vor der Veraschung ermitteln wir das Frisch- und das Trockengewicht der Proben, so daß die

Aktivitäten auch auf die verschiedenen Zustände bezogen werden können.

Zur Bestimmung der Sr-90-Aktivität wird die Asche nach Zugabe von Sr- und Ba-Träger mit  $\text{HNO}_3$  und  $\text{HClO}_4$  aufgeschlossen, der Rückstand mit Wasser ausgelaugt und die Erdalkalimetalle als Phosphate ausgefällt. Die abgetrennten Phosphate löst man mit verdünnter  $\text{HNO}_3$  und trennt Sr und Ba durch Fällung mit konz.  $\text{HNO}_3$  als Nitrate ab. Dann wird, wie im Abschnitt 2.312 angegeben, weiter verfahren.

Zur Berechnung der Ergebnisse werden folgende Formeln verwendet:

Rest- $\beta$ -Aktivität der Asche

$$A = \frac{450}{G_3} f_{\text{KCl}} (n - n_0) - 0,76 C_1 \quad \text{pc/g} \quad (36)$$

Sr-90-Aktivität

$$A = \frac{0,45}{E_A} f_Y k_{\text{Sr}} k_Y A_0 \quad \text{pc/g Asche} \quad (37)$$

$$A = \frac{0,45}{E_A c_2} f_Y k_{\text{Sr}} k_Y A_0 \quad \text{pc/g Ca} \quad (38)$$

In den Formeln bedeuten:

$f_{\text{KCl}}$  Korrekturfaktor aus der Eichung mit KCl

$E_A$  Ascheneinwaage in g

$c_1$  Kaliumgehalt der Asche in mg K/g

$c_2$  Calciumgehalt der Asche in g Ca/g

(Erläuterung der anderen Symbole s. 2.312)

## 2.323 Meßergebnisse

Die bei den Grasuntersuchungen gefundenen Meßergebnisse sind in der Tab. 31 aufgeführt.

Tab. 31

Rest- $\beta$ -Aktivität und Sr-90-Aktivität von Gras

| Ort             | Monat   | Rest- $\beta$ -Akt. | Sr-90-Aktivität |               |       |      |                    |
|-----------------|---------|---------------------|-----------------|---------------|-------|------|--------------------|
|                 |         | Asche               | Frischsubst.    | Trockensubst. | Asche | Ca   | Fläche             |
|                 |         | pc/g                | pc/g            | pc/g          | pc/g  | pc/g | mg/km <sup>2</sup> |
| Haus Lindenberg | Januar  | 48                  | -               | 380           | 2,3   | 55   | -                  |
|                 | Februar | 62                  | -               | -             | 4,4   | 96   | -                  |
|                 | März    | 40                  | -               | 640           | 2,1   | 36   | -                  |
|                 | April   | 124                 | -               | 300           | 2,4   | 41   | -                  |
|                 | Juli    | 180                 | 140             | 450           | 4,8   | 72   | 0,11               |
|                 | Oktober | 62                  | -               | 180           | 1,3   | 42   | -                  |
| Kirchholzer Hof | Juli    | 48                  | 350             | 590           | 4,7   | 98   | 0,18               |
|                 | Oktober | 65                  | -               | 280           | 1,3   | 35   | -                  |
| Gut Winterbach  | Juli    | 210                 | 200             | 720           | 6,7   | 145  | 0,19               |
|                 | Oktober | 67                  | -               | 210           | 1,5   | 52   | -                  |

2.324 Diskussion

In den Abb. 23 und 24 sind die Ergebnisse der Untersuchungen von Grasproben dargestellt. In der Abb. 23 sind außer den Werten der Grasaktivitäten auch die Bodenaktivitäten der zugehörigen Bodenproben aufgetragen. Die Werte haben die Dimension  $\frac{\text{pc Sr-90}}{\text{g Ca}}$ , da diese Größe von besonderem biologischen Interesse ist. Das Sr-90 verhält sich chemisch dem Ca ähnlich und wird deshalb mit diesem von den Pflanzen aufgenommen. Nach Untersuchungen von RUSSELL (53) ist der Diskriminierungsfaktor  $(\text{Sr-90/Ca})_{\text{Boden}}$ :  $(\text{Sr-90/Ca})_{\text{Gras}}$  ganz allgemein gleich 1 zu setzen, wenn man nur den Sr-90-Anteil betrachtet, der über die Wurzeln aufgenommen wird.

Das Sr-90 wird also vom Gras aus dem Boden im selben Maß wie das Ca aufgenommen. Aus unseren Messungen ergibt sich ein Mittelwert des Diskriminierungsfaktors von 0,85. Daß dieser Wert bei uns kleiner als 1 ausfällt, ist nicht überraschend, da wir einerseits in den Quotienten als  $\text{Ca}_{\text{Boden}}$  die gesamte im Boden vorhandene Ca-Menge eingesetzt haben. Das ist aber nicht zulässig, da nicht alles Ca im Boden für die Pflanze verfügbar ist. Andererseits ist bei den Sr-90-Werten für Gras natürlich auch der Anteil enthalten, der über das Blatt aufgenommen wird. Die Berücksichtigung dieser beiden Fakten würde zu einem Diskriminierungsfaktor führen, der größer ist als der von uns angegebene.

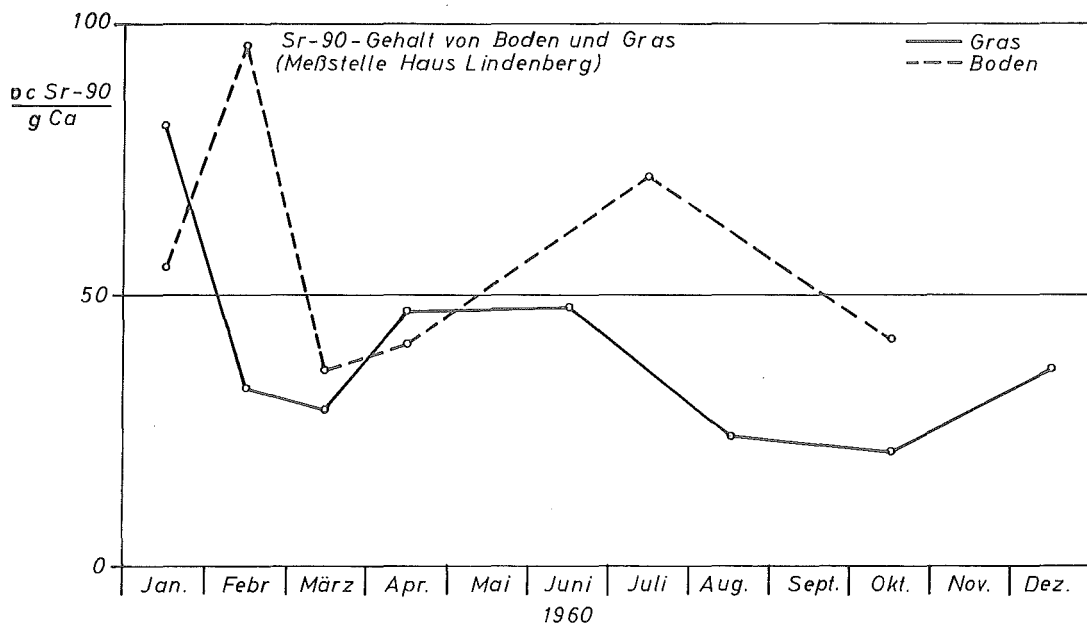


Abb. 23. Vergleich der Sr-90-Kontamination von Boden und Gras in pc Sr-90/g Ca.

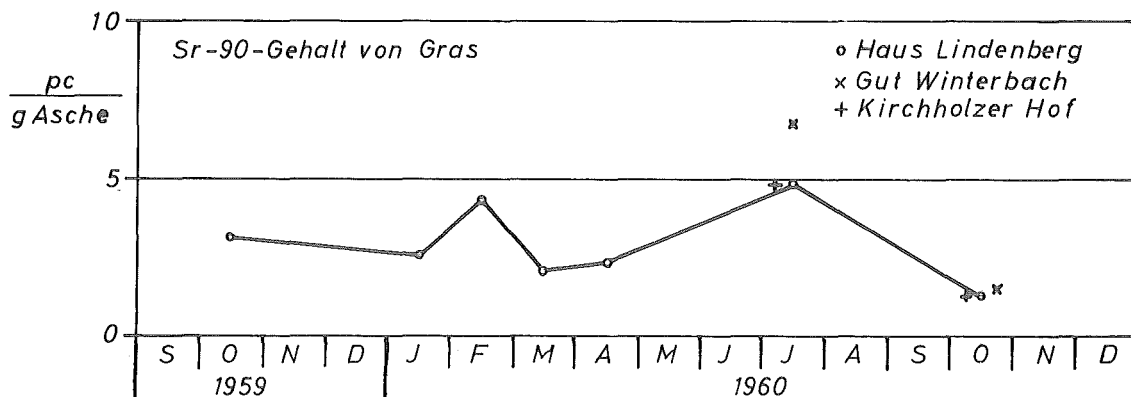


Abb. 24. Sr-90-Kontamination von Gras in pc/g Asche

In Abb. 24 sind die Werte der Sr-90-Aktivitäten aller von uns untersuchten Grasproben aufgetragen. Ein systematischer Gang ist hier nicht zu erkennen. Die Aktivitäten liegen zwischen 1,3 und 6,7 pc/g Asche. Zum Vergleich geben wir an, daß die in Kempten im Allgäu gemessenen Grasaktivitäten im Juni und Juli 1960 bei 9,5 bzw. 8,0 pc/g Asche lagen. Die Grasaktivitäten bezogen auf g Ca liegen bei unseren Proben zwischen 30 und 120 pc/g Ca, während die Angaben der Meßstelle Kempten zwischen 94 und 111 pc/g Ca schwanken. Der Sr-90-Anteil an der Rest- $\beta$ -Aktivität der Grasadische beträgt bei den von uns untersuchten Proben im Mittel 4 %. Grasproben der Meßstelle Kempten enthalten im Mittel (4 Proben) 12 % Sr-90.

## 2.33 Aktivität von Feldfrüchten und Milch

### 2.331 Grundlagen

Aus der unübersehbaren Zahl der Nahrungsmittel greifen wir als eines der wichtigsten die Milch heraus, die nach den Angaben des Statistischen Jahrbuches über Ernährung, Landwirtschaft und Forsten, Hamburg 1959, an der Spitze des Lebensmittelverbrauches in der Bundesrepublik 1957/58 lag. Es hat sich gezeigt, daß von den Menschen etwa 65 % des Sr-90 über Milch und Milchprodukte aufgenommen werden. Die Calciumversorgung des Menschen erfolgt im wesentlichen über die Milch (Westdeutschland 1957/58 zu 70 %). Es folgen in weitem Abstand Getreideprodukte und Kartoffeln (8,8 bzw. 7,9%).

Die von uns untersuchten Milchproben stammen von den Stellen Haus Lindenberg und Gut Winterbach. Da dort auch Grasproben entnommen werden, haben wir die Möglichkeit, im Laufe der Zeit einen etwaigen Zusammenhang zwischen Sr-90-Gehalt der Milch und Sr-90-Gehalt von Boden und Gras festzustellen.

Als weitere landwirtschaftliche Produkte haben wir Kartoffeln, Zuckerrüben und einige Gemüsesorten (Erbsen, Kohlrabi, Salat, Bohnen, Karotten) untersucht. Die Proben stammen von den in Tab.3 angegebenen Äckern oder von in der Nähe dieser Äcker liegenden Grundstücken.

### 2.332 Methodik

Milch: 2,5 l Milch werden mit einem Oberflächenverdampfer eingedickt und der Rückstand im Muffelofen verascht. Die Asche wird mit einem Endfensterzählrohr (Anton 1007 T) auf Gesamt- $\beta$ -Aktivität untersucht. Der Kaliumgehalt der Asche wird flammenphotometrisch ermittelt und der sich daraus ergebende K-40-Anteil für die Angabe der Rest- $\beta$ -Aktivität von der gefundenen Gesamtaktivität abgezogen.

Zwecks Sr-90-Bestimmung wird die Asche in  $\text{HNO}_3$  gelöst und die im alkalischen Medium schwer löslichen Phosphate (u.a. von Ca, Sr, Ba) durch Zugabe von Phosphorsäure in ammoniakalischer Lösung ausgefällt und der Niederschlag abzentrifugiert. Nach Auflösen des Niederschlages in  $\text{HNO}_3$  folgen die in Abschnitt 2.312 beschriebene Ca-Sr-Trennung und die Sr-Bestimmung.

stimmung. ( Aktivitätsberechnung s. Nachtrag Seite 146)

Kartoffeln, Zuckerrüben und Gemüsesorten:

Die Proben werden zunächst an der Luft oder im Trockenschrank getrocknet und dann im Muffelofen verascht. Von der Asche wird die Gesamt- $\beta$ -Aktivität bestimmt (Antonzähler 1007 T). Nach Ermittlung des Kaliumgehaltes der Asche wird die Rest- $\beta$ -Aktivität der Proben berechnet.

Für die Sr-90-Bestimmung wird die Asche, wie bei 2.322 (Gras) angegeben, mit  $\text{HNO}_3$  und  $\text{HClO}_4$  gelöst und weiterverarbeitet. (Aktivitätsber. s. 2.322)

### 2.333 Meßergebnisse

In den Tabellen 32 und 33 sind die Ergebnisse der Untersuchungen von Milch- und Feldfruchtproben aufgeführt.

Tab.32

#### Rest- $\beta$ -Aktivität und Sr-90-Aktivität von Milch

| Ort             | Monat    | Rest- $\beta$ -Aktivität | Sr-90-Aktivität |         |
|-----------------|----------|--------------------------|-----------------|---------|
|                 |          | pc/l                     | pc/l            | pc/g Ca |
| Haus Lindenberg | Januar   | 297                      | 9,5             | 7,9     |
|                 | Februar  | 152                      | 10,2            | 7,9     |
|                 | März     | 158                      | 10,5            | 8,6     |
|                 | April    | 133                      | 8,1             | 6,1     |
|                 | Juni     | 228                      | 4,5             | 3,6     |
|                 | August   | 245                      | 8,6             | 7,3     |
|                 | Oktober  | 332                      | 0,6             | 0,6     |
| Gut Winterbach  | Juni     | 323                      | 5,9             | 5,4     |
|                 | August   | 237                      | 5,7             | 4,7     |
|                 | Oktober  | 214                      | 5,7             | 4,7     |
|                 | Dezember | 444                      | 1,6             | 1,1     |
| Kirchholzer Hof | Dezember | 83                       | 2,7             | 1,8     |

Tab.33

Rest-β-Aktivität und Sr-90-Aktivität von Feldfrüchten

| Feldfrucht            | Monat     | Ort                   | Rest-β-Aktivität          |                            |               | Sr-90-Aktivität            |                             |               |            |
|-----------------------|-----------|-----------------------|---------------------------|----------------------------|---------------|----------------------------|-----------------------------|---------------|------------|
|                       |           |                       | Frisch-<br>subst.<br>pc/g | Trocken-<br>subst.<br>pc/g | Asche<br>pc/g | Frisch-<br>subst.<br>pc/kg | Trocken-<br>subst.<br>pc/kg | Asche<br>pc/g | Ca<br>pc/g |
| Kartoffeln            | Juli      | Gut Lorsbeck          | 1,4                       | 5,1                        | 198           | 4                          | 10                          | 0,4           | 36         |
| Kartoffeln            | Juli      | Kirchholzer<br>Hof    | 1,2                       | 4,9                        | 136           | 2                          | 7                           | 0,2           | 18         |
| Kartoffeln            | Juli      | Haus Linden-<br>berg  | 1,7                       | 6,8                        | 180           | 5                          | 20                          | 0,5           | 37         |
| Kohlrabi              | Juli      | Gut Winterbach        | 1,1                       | 18,0                       | 134           | 10                         | 190                         | 1,4           | 30         |
| Bohnen                | Juli      | Gut Winterbach        | 0,9                       | 8,5                        | 157           | -                          | -                           | -             | -          |
| Karotten              | Juli      | Mischprobe            | 0,6                       | 6,1                        | 91            | 3                          | 34                          | 0,5           | 12         |
| Salat                 | Juli      | Kirchholzer<br>Hof    | 1,2                       | 23,0                       | 97            | 2                          | 280                         | 1,2           | 20         |
| Erbsen                | Juli      | Wasserwerk<br>Hambach | 0,4                       | -                          | 40            | 16                         | -                           | 1,6           | 16         |
| Kartoffeln            | September | Gut Lorsbeck          | 1,7                       | 8,5                        | 204           | 2                          | 10                          | 0,2           | 15         |
| Kartoffeln            | September | Kirchholzer<br>Hof    | 1,4                       | 6,7                        | 161           | 4                          | 21                          | 0,5           | 40         |
| Kartoffeln            | September | Haus Linden-<br>berg  | 1,3                       | 6,6                        | 134           | 17                         | 84                          | 1,7           | 170        |
| Zuckerrüben           | Oktober   | Gut Lorsbeck          | 0,1                       | 0,5                        | 18            | 10                         | 50                          | 1,8           | 44         |
| Zuckerrüben           | Oktober   | Haus Linden-<br>berg  | 0,4                       | 1,5                        | 51            | 10                         | 38                          | 1,3           | 29         |
| Zuckerrüben           | Oktober   | Wasserwerk<br>Hambach | 0,03                      | 0,1                        | 4             | -                          | -                           | -             | -          |
| Zuckerrüben-<br>blatt | Oktober   | Gut Lorsbeck          | -                         | -                          | < 2           | -                          | -                           | 0,6           | 14         |
| Zuckerrüben-<br>blatt | Oktober   | Haus Linden-<br>berg  | -                         | -                          | 4             | -                          | -                           | 1,0           | 18         |
| Zuckerrüben-<br>blatt | Oktober   | Wasserwerk<br>Hambach | -                         | -                          | 10            | -                          | -                           | 0,8           | 13         |

2.334 Diskussion

Die Ergebnisse der Milchuntersuchungen (Tab.32) sind in der Abb.25 graphisch aufgetragen. Ein Abfall der Aktivität ist erkennbar.



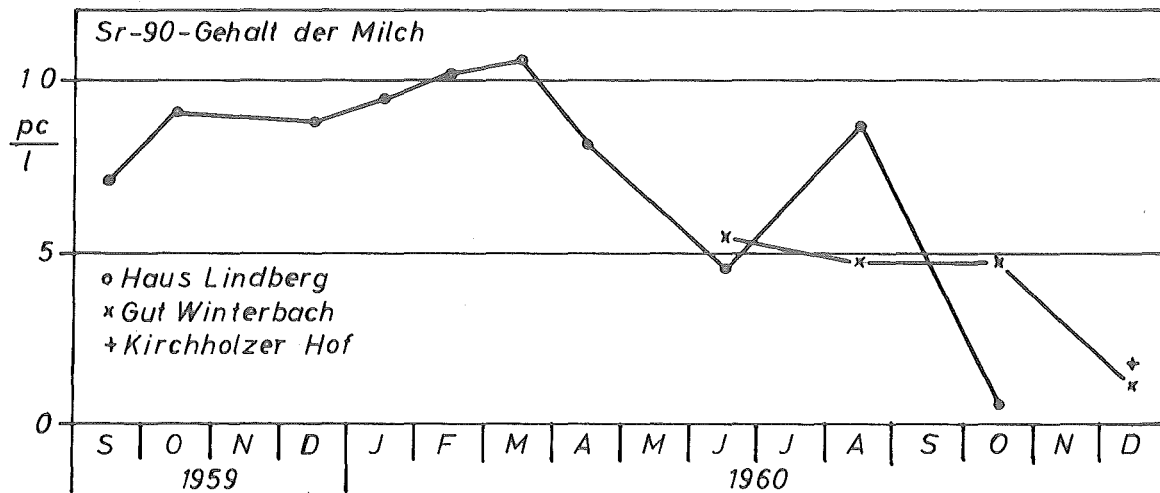


Abb. 25. Sr-90-Kontamination der Milch in pc/l

In Abb. 26 sind die Aktivitäten von Milch- und Grasproben der Probestelle Haus Lindenberg zusammen dargestellt.

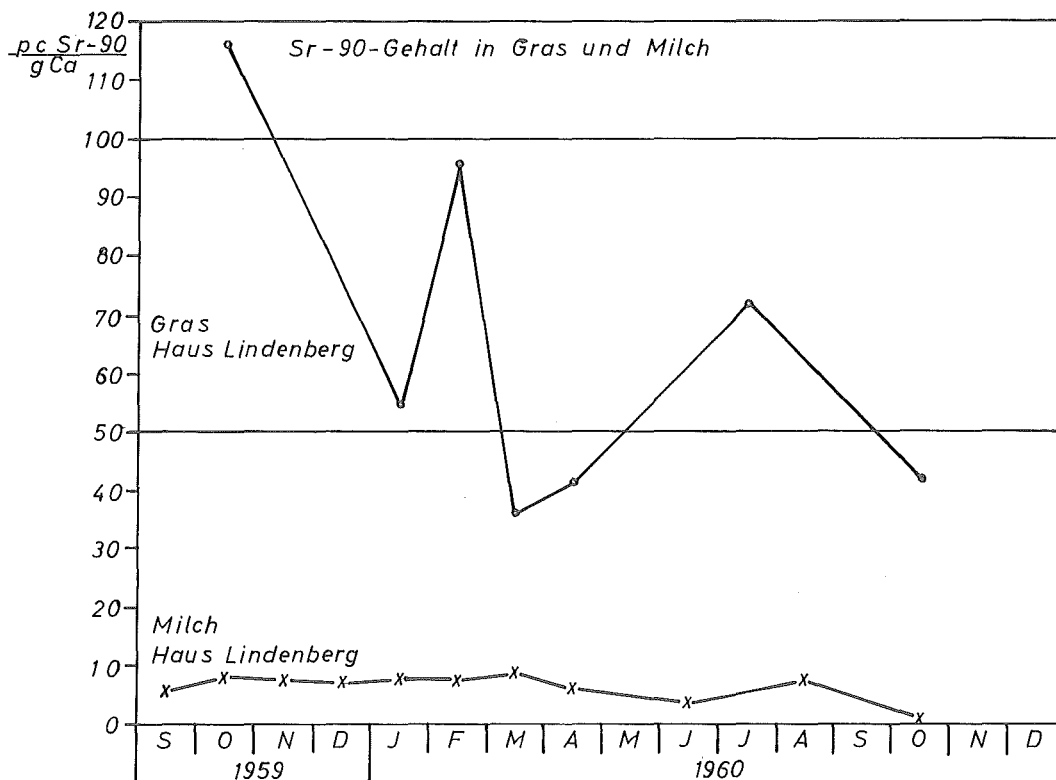


Abb. 26. Sr-90-Kontamination von Gras und Milch in pc/g Ca.

Hier ist als Ordinate die biologisch charakteristische Einheit pc/g Ca gewählt, so daß die Werte miteinander vergleichbar sind. Es ergibt sich aus unseren Messungen ein mittlerer Diskriminierungsfaktor von 10. Dies stimmt mit englischen Versuchsergebnissen von R.S. RUSSELL (53) überein, der einen Faktor von 7 - 10 angibt.

Unsere Messungen liefern als Ergebnis einen mittleren Kontaminationsgrad der Milch im Jahre 1960 von 5,5 pc/g Ca. Zum Vergleich seien einige Werte anderer Meßstellen, entnommen aus den zusammenfassenden Berichten des Bundesministeriums für Atomfragen und Wasserwirtschaft (48), angeführt: Baden-Württemberg 12,7 ; Kiel 8,6; Lindau am Bodensee 8,0; Kempten im Allgäu 10,8; Hamburg 4,1.

### Nachtrag:

#### Berechnung der Milchaktivität

Rest- $\beta$ -Aktivität

$$A = c_3 \left[ \frac{450}{G_3} f_{KCl} (n - n_0) - 0,76 c_1 \right] \quad \text{pc/l}$$

Sr-90-Aktivität

$$A = \frac{0,45 \cdot c_3}{E_A} f_Y k_{Sr} k_Y A_0 \quad \text{pc/l}$$

$$A = \frac{0,45}{E_A c_2} f_Y k_{Sr} k_Y A_0 \quad \text{pc/g Ca}$$

mit

$c_3$  = Aschegehalt der Milch in g/l  
( übrige Symbole s.S. 132 und S. 139)

Verzeichnis der Tabellen

|        |  |    |
|--------|--|----|
| Tab. 1 | Meßprogramm der Umgebungsüberwachung (Stand Dez.1960)<br>Überwachung der Luft  | 13 |
| Tab. 2 | Meßprogramm der Umgebungsüberwachung (Stand Dez.1960)<br>Überwachung des Wassers   | 14 |
| Tab. 3 | Meßprogramm der Umgebungsüberwachung (Stand Dez.1960)<br>Überwachung von Boden, Bewuchs und landwirtschaftlichen<br>Produkten  | 15 |
| Tab. 4 | Strahlung im Luftraum  | 22 |
| Tab. 5 | Die Zerfallsreihen der Radium- und Thorium-Emanation   | 26 |
| Tab. 6 | Verteilung natürlicher radioaktiver Gase und Aerosole<br>bei mittlerem Vertikalaustausch in Luft   | 26 |
| Tab. 7 | Effektive Halbwertszeit von RaB + RaC als Funktion der<br>Abklingzeit  | 33 |
| Tab. 8 | $\alpha$ - und $\beta$ -Aktivität der Aerosole   | 39 |
| Tab. 9 | Jahresmittel der Aerosolaktivität  | 46 |
| Tab.10 | $\beta$ -Aktivität des Gesamtniederschlages (Luftstaub und<br>Regen)   | 60 |
| Tab.11 | Langlebige $\beta$ -Aktivität des Gesamtniederschlages<br>Mittelwerte für alle Meßstellen im Jahre 1960  | 64 |
| Tab.12 | Ergebnisse der Graukeilspektrometrie von vier Nieder-<br>schlagsproben   | 70 |
| Tab.13 | Niederschlagsanalysen  | 71 |
| Tab.14 | Windverteilung   | 72 |
| Tab.15 | Relative Häufigkeit (%) des Beginns einer mindestens<br>200 m dicken Schicht mit einem Temperaturgefälle von<br>mindestens 0,5 °C/100 m unterhalb einer bestimmten Höhe<br>nach Morgenaufstiegen in Köln | 73 |
| Tab.16 | Temperatur, relative Luftfeuchte und Niederschlagssumme<br>Monats- und Jahreswerte 1960  | 88 |
| Tab.17 | Zusammenhang zwischen Erhöhungen der Strahlung in Luft-<br>raum und Niederschlägen   | 96 |

|        |   |     |
|--------|---|-----|
| Tab.18 | Langlebige $\alpha$ - und $\beta$ -Aktivität des Grundwassers                             | 101 |
| Tab.19 | Langlebige $\alpha$ - und $\beta$ -Aktivität des Trink- und Betriebswassers               | 104 |
| Tab.20 | Kurzlebige $\beta$ -Aktivität von Trinkwasser   | 105 |
| Tab.21 | Langlebige $\alpha$ - und $\beta$ -Aktivität des Oberflächenwassers                       | 108 |
| Tab.22 | Kurzlebige $\beta$ -Aktivität von Oberflächenwasser                                       | 112 |
| Tab.23 | Mittelwerte der $\alpha$ -, $\beta$ - und Rest- $\beta$ -Aktivität des Oberflächenwassers | 114 |
| Tab.24 | Jahresmittelwerte bzw. Jahressummen verschiedener Meßgrößen                               | 116 |
| Tab.25 | $\beta$ -Aktivität von Wasserpflanzen   | 123 |
| Tab.26 | $\beta$ -Aktivität von Fischen  | 123 |
| Tab.27 | Sr-90-Aktivität von Rurschlamm  | 124 |
| Tab.28 | Aktivität des Bodens  | 133 |
| Tab.29 | Sr-90-Aktivitäten von Böden in der Bundesrepublik   | 134 |
| Tab.30 | Flächenaktivität in Abhängigkeit von der Einstichtiefe                                    | 135 |
| Tab.31 | Rest- $\beta$ -Aktivität und Sr-90-Aktivität von Gras                                     | 140 |
| Tab.32 | Rest- $\beta$ -Aktivität und Sr-90-Aktivität von Milch                                    | 143 |
| Tab.33 | Rest- $\beta$ -Aktivität und Sr-90-Aktivität von Feldfrüchten                             | 144 |

Verzeichnis der Abbildungen

|         |  |    |
|---------|--|----|
| Abb. 1  | Harte und weiche Komponente der Strahlung im bodennahen Luftraum   | 20 |
| Abb. 2  | Kreislauf der natürlichen und künstlichen radioaktiven Substanzen in Luft, Wasser und Boden  | 27 |
| Abb. 3  | Korrekturfaktor zur Berücksichtigung des zeitlichen Abklingens der Aerosolproben bei einer Sammelzeit von 60 min   | 32 |
| Abb. 4  | Schema zur Ermittlung der effektiven Verzögerungszeit in der Anzeige der Aktivitätskonzentration der Aerosole  | 36 |
| Abb. 5  | Effektive Halbwertszeit und Korrekturfaktor als Funktion des Anteils der Tn-Reihe an der Aerosolaktivität  | 37 |
| Abb. 6  | Monatsmittel der $\alpha$ -Aktivität der Aerosole 1959/60  | 51 |
| Abb. 7  | Monatsmittel der $\beta$ -Aktivität der Aerosole 1959/60   | 51 |
| Abb. 8  | Monatlich dem Boden zugeführte langlebige $\beta$ -Aktivität in den Jahren 1958/60   | 66 |
| Abb. 9  | Gesamt-Gamma-Aktivitäten   | 69 |
| Abb. 10 | Graukeilspektrogramme  | 69 |
| Abb. 11 | Kontinuierliche Luftüberwachung  | 76 |
| Abb. 12 | Relative Häufigkeit der Windrichtungen und Windstillen in den Windstärkestufen: $< 0,5$ m/sec (Calmen), $0,5 - 2,9$ m/sec, $3,0 - 9,9$ m/sec, $> 10$ m/sec | 89 |
| Abb. 13 | Relative Häufigkeit der Windrichtungen im Forschungsgelände Jülich   | 89 |
| Abb. 14 | Tagesgang von Lufttemperatur ( $^{\circ}\text{C}$ ) und kurzlebiger Aerosolaktivität (Imp/min) in Aachen und im Reaktorgelände                             | 92 |
| Abb. 15 | Das Eindringen der täglichen Temperaturwelle in den Boden durch die Wärmeleitung   | 92 |
| Abb. 16 | Kurzlebige $\beta$ -Aktivität der Aerosole in Imp/min  | 93 |
| Abb. 17 | Tagesgang der Temperatur im Reaktorgelände und in Aachen   | 94 |

|        |   |     |
|--------|---|-----|
| Abb.18 | Zusammenhang zwischen Zunahme der Strahlung im Luftraum und Niederschlagsintensität   | 95  |
| Abb.19 | Monatsmittel der Aktivität des Oberflächenwassers   | 115 |
| Abb.20 | Monatsmittelwerte der $\beta$ -Aktivität des Oberflächenwassers an den Meßstellen oberhalb und unterhalb der Einleitungsstelle des Entwässerungsgrabens | 116 |
| Abb.21 | Korrelation zwischen der Aktivität des Oberflächenwassers und des Gesamtniederschlages sowie Regemengen 1960  | 117 |
| Abb.22 | Kontamination des Bodens mit Sr-90 in mc/km <sup>2</sup>  | 136 |
| Abb.23 | Vergleich der Sr-90-Kontamination von Boden und Gras in pc/g Ca   | 141 |
| Abb.24 | Sr-90-Kontamination von Gras in pc/g Asche  | 141 |
| Abb.25 | Sr-90-Kontamination der Milch in pc/l   | 145 |
| Abb.26 | Sr-90-Kontamination von Gras und Milch in pc/g Ca   | 145 |

Literaturverzeichnis

- (1) K.J. VOGT, H.W. JENSEN, A.MAAS, R. TZSCHASCHEL  
Radioaktivität in der Umgebung der Atomforschungsanlage  
des Landes Nordrhein-Westfalen bei Jülich. Jahresbericht 1959  
GFKF / S 002
- (2) H. KIEFER, R. MAUSHART  
Die Umgebungsüberwachung atomtechnischer Anlagen mit Zählrohren.  
Atomwirtschaft 3, 247, (1959)
- (3) H. ISRAEL  
Luftelektrizität und Radioaktivität  
Springer Verlag Berlin, Göttingen, Heidelberg, 1957
- (4) H. MÜLLER  
Abschätzung der Ansprechempfindlichkeit eines zählenden Strahlungsdetektors gegenüber gleichmäßig im Raum verteilter Aktivität.  
Atompraxis 3, 407, (1957)
- (5) B. HULTQUIST  
Kungl. Svenska Vetenskapakademiens Handlingar IV, 6, 19 (1956)
- (6) W. JACOBI, A. SCHRAUB, K. AURAND, H. MUTH  
Über das Verhalten der Zerfallsprodukte des Radons in der Atmosphäre  
Beitr. Phys. Atmos. 31, 244, (1959)
- (7) O. HAXEL, G. SCHUMANN  
Z. Phys. 142, 137, (1955)
- (8) H. WEXLER, L. MACHTA, D.H. PACK, F.D. WHITE  
Ber. Genfer Atomkonferenz 13, 333, (1956)
- (9) R. GEIGER  
Das Klima der bodennahen Luftschicht  
Vieweg u. Sohn, Braunschweig 1957
- (10) L. LASSEN  
Die Reinigung der Luft von radioaktiven Aerosolen  
Atomwirtschaft 5, 511 und 582, (1960)

- (11) R. NEUWIRTH  
Diskontinuierliche Bestimmung des radioaktiven Aerosolgehalts in Luft  
Atompraxis 3, 372, (1957)
- (12) Ch. TRITREMME  
Sicherheits- und Schutzmaßnahmen  
Atompraxis 7, 71, (1961)
- (13) W. ZUMACH  
Abscheiden radioaktiver Aerosole mit Faserfiltern  
Atompraxis 3, 377, (1957)
- (14) M.H. WILKENING  
Natural radioactivity as a tracer in the sorting of aerosol activity to mobility  
Rev. Sci. Inst. 23, 13 (1952)
- (15) C. L. LINDEKEN  
The ratio of alpha- to beta activity of natural atmospheric radioactivity  
UCRL - 5342, März 1959
- (16) W. SCHMIDT  
Physikal.Z. 27, 371, (1926)
- (17) J. PRIEBSCHE  
Die Höhenverteilung der radioaktiven Stoffe in der freien Luft  
Meteor.Z. 49, 80, (1932)
- (18) G. SCHUMANN  
Untersuchung der Radioaktivität der Atmosphäre mit der Filtermethode  
Archiv für meteorologische Biophysik und Bioklimatologie  
Serie A, 9, 204, (1956)
- (19) BLIFFORD, FRIEDMANN, LOCKART, BAUS  
Radiactivity in the air  
Naval Research Laboratory Report NRL - 4760, Juni 1956
- (20) H. ISRAEL  
Zur Vergleichbarkeit von Radioaktivitätsmessungen  
Atomkernenergie 6, 218-22 (1961)



- (21) A. MAAS  
 Sur la proportion des produits de filliation du thoron dans  
 l'activite des aerosols de l'air a proximite du sol et mesures  
 comparatives au moyen d'appareils de differente fabrication  
 Atompraxis 5, 173-77 (1961)
- (22) E.A. MARTELL  
 Atmospheric aspects of Sr-90-fallout  
 Science 129, 1197, (1959)
- (23) W.F. LIBBY  
 Radioactive strontium fallout  
 Proc. Nat. Acad. Sci. 42, 365, (1956)
- (24) W.F. LIBBY  
 Current research findings on radioactive fallout  
 Proc. Nat. Acad. Sci. 42, 945, (1956)
- (25) W.F. LIBBY  
 Radioactive fallout  
 Proc. Nat. Acad. Sci. 43, 358, (1957)
- (26) R.N. CROOKS, R.G.D. OSMOND, E.M.R. FISHER, M.J. OWERS, T.W. EVETT  
 The deposition of fission products from distant nuclear test  
 explosions  
 Results to the middle of 1960  
 AERE - R 3349
- (27) G. HERRMANN, H. HAUSER, H.H. RIEDEL  
 Kritische Bemerkungen zur Beurteilung der radioaktiven Verseuchung  
 aufgrund von Gesamtaktivitätsmessungen  
 Nukleonik 1, 305, (1959)
- (28) LINDACKERS, OSTER  
 Nachtrag zu den Monatsberichten April 1959 bis März 1960 über die  
 Messungen der Grundaktivität im Raume Jülich  
 Technischer Überwachungs-Verein Köln, 1960
- (29) A.W. BREWER  
 Quart. J. Roy. Meteorol. Soc. 75, 351, (1949)

- (30) G.M.B. DOBSON  
Proc. Roy. Soc. (London) 236 A, 187, (1956)
- (31) N.G. STEWART, R.G.D. OSMOND, R.N. CROOKS, E.N. FISHER  
The world- wide deposition of long-lived fission products from  
nuclear test explosions  
AERE HP/R 2354, Okt. 1957
- (32) L. MACHTA  
Discussion of meteorological factors und fallout distribution.  
Paper, vorgelegt auf der Jahressitzung der American Association  
for the Advancement of Science (Dez.1957)
- (33) L. FRY, P.K. KURODA  
Stratospheric fallout of strontium-89 und barium-140  
Science 129, 1742, (1959)
- (34) LINDACKERS, OSTER  
Jahresbericht über die Messungen der Grundaktivität in der Um-  
gebung der gemeinsamen Atomforschungsanlage des Landes Nord-  
rhein-Westfalen 1.April 59 - 31.März 1960  
Technischer Überwachungs-Verein Köln, 1960
- (35) R. TZSCHASCHEL  
Gammaspektrometrische Untersuchung von Niederschlagsproben nach  
der Graukeilmethode  
Atompraxis 7, 170, (1961)
- (36) F. HARASHI, T. SCHÖNFELD  
Feststellung der Freisetzung "frischer" Spaltprodukte in die  
Biosphäre durch Gammaspektrometrie  
Atompraxis 6, 414, (1960)
- (37) R.G.D. OSMOND, A.G. PRATCHETT  
The detemination of radioactivity in water  
AERE - AM 51
- (38) H. ISRAEL  
Die meteorologischen Verhältnisse am Standort des Atomreaktors  
Meteorologisches Observatorium Aachen des Deutschen Wetterdienstes

- (39) R. HOLZAPFEL, M. MANIG, H. SCHIRMER  
Amtliches Gutachten über die klimatischen Verhältnisse, insbesondere die der untersten Luftschichten am Standort des Kern-Reaktors bei Stetternich/Krs. Jülich (Rheinland)  
Deutscher Wetterdienst, Offenbach a.M. 1958
- (40) O.G. SUTTON  
Micrometeorology  
Mc Graw Hill, New York 1953
- (41) J.W. HEALY  
Nucleonics 10, Nr. 10, (1952)
- (42) H. KIEFER, R. MAUSHART  
Kontinuierliche Direktüberwachung kleiner  $\beta$ -Aktivitäten im Wasser  
Atompraxis 5, 431, (1959)
- (43) A. HINZPETER  
Ionenaustauscher-Verfahren zur Messung kleiner  $\beta$ -Aktivitäten von Regen  
Naturw. 44, 611, (1957)
- (44) H. MÜNZEL  
Fehler und Verluste beim Eindampfen wässriger Proben.  
Strahlenschutz, Heft 6 : Meßmethoden der Radioaktivität,  
Gersbach u. Sohn, Braunschweig 1958
- (45) K. HABERER  
Radioaktive Stoffe im Wasser und ihre Messung  
Vom Wasser 25, 157, Verlag Chemie, Weinheim 1958
- (46) A. DANNECKER, H. KIEFER, R. MAUSHART  
Messungen kleiner  $\alpha$ - und  $\beta$ -Aktivitäten im Wasser  
Nucleonik 1, 319, (1959)
- (47) H. KIEFER, R. MAUSHART  
Die natürliche Radioaktivität im Wasser  
Nukleonik 1, 22 (1959)
- (48) Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung  
Quartalsberichte des Bundesministeriums für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft

- (49) BRYANT et al.  
Radiostrontium fallout in biological materials in Britain  
AERE HP/R 2056, 1958
- (50) A. SITTKUS, E. WELTE  
Der Sr-90-Gehalt verschiedener Böden im Bundesgebiet und West-Berlin  
Naturwiss. 45, 463 (1958)
- (51) E. GROSS  
Untersuchungen von Boden, Weidegras und Milch auf Sr-90  
Strahlenschutz, Heft 18  
Gersberg u. Sohn, Braunschweig 1961
- (52) W. KLUG  
Die Verweilzeit von Sr-90 in der Atmosphäre  
Strahlenschutz, Heft 18  
Gersberg u. Sohn, Braunschweig 1961
- (53) R.S. RUSSELL  
The passage of fission products through food chains.  
Symposium Radioisotopes in the Biosphere, Minnesota 1959



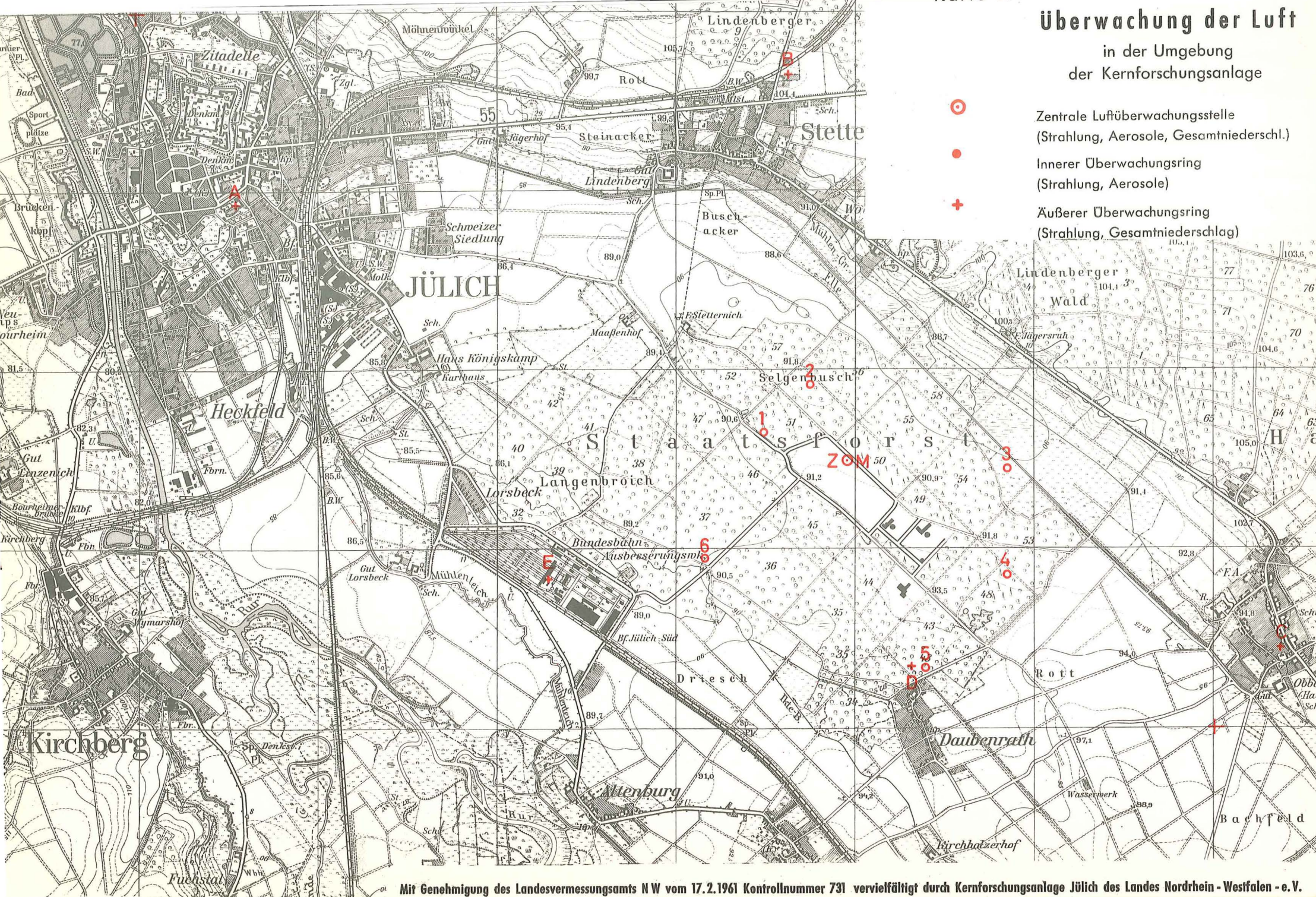
# Überwachung der Luft

in der Umgebung  
der Kernforschungsanlage

Zentrale Luftüberwachungsstelle  
(Strahlung, Aerosole, Gesamtniederschlag)

Innerer Überwachungsring  
(Strahlung, Aerosole)

Äußerer Überwachungsring  
(Strahlung, Gesamtniederschlag)



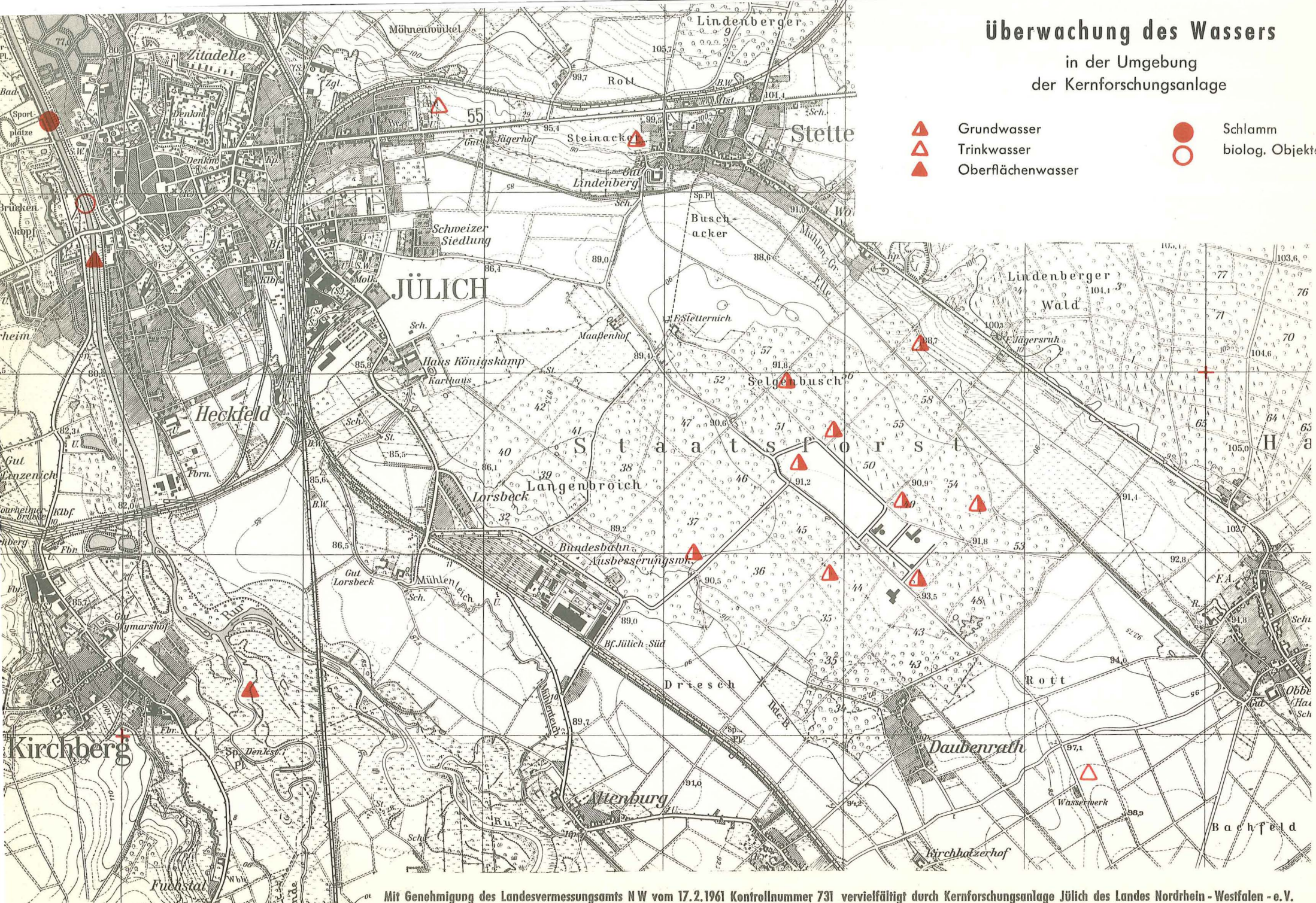


# Überwachung des Wassers

in der Umgebung  
der Kernforschungsanlage

- ▲ Grundwasser
- △ Trinkwasser
- ▲ Oberflächenwasser

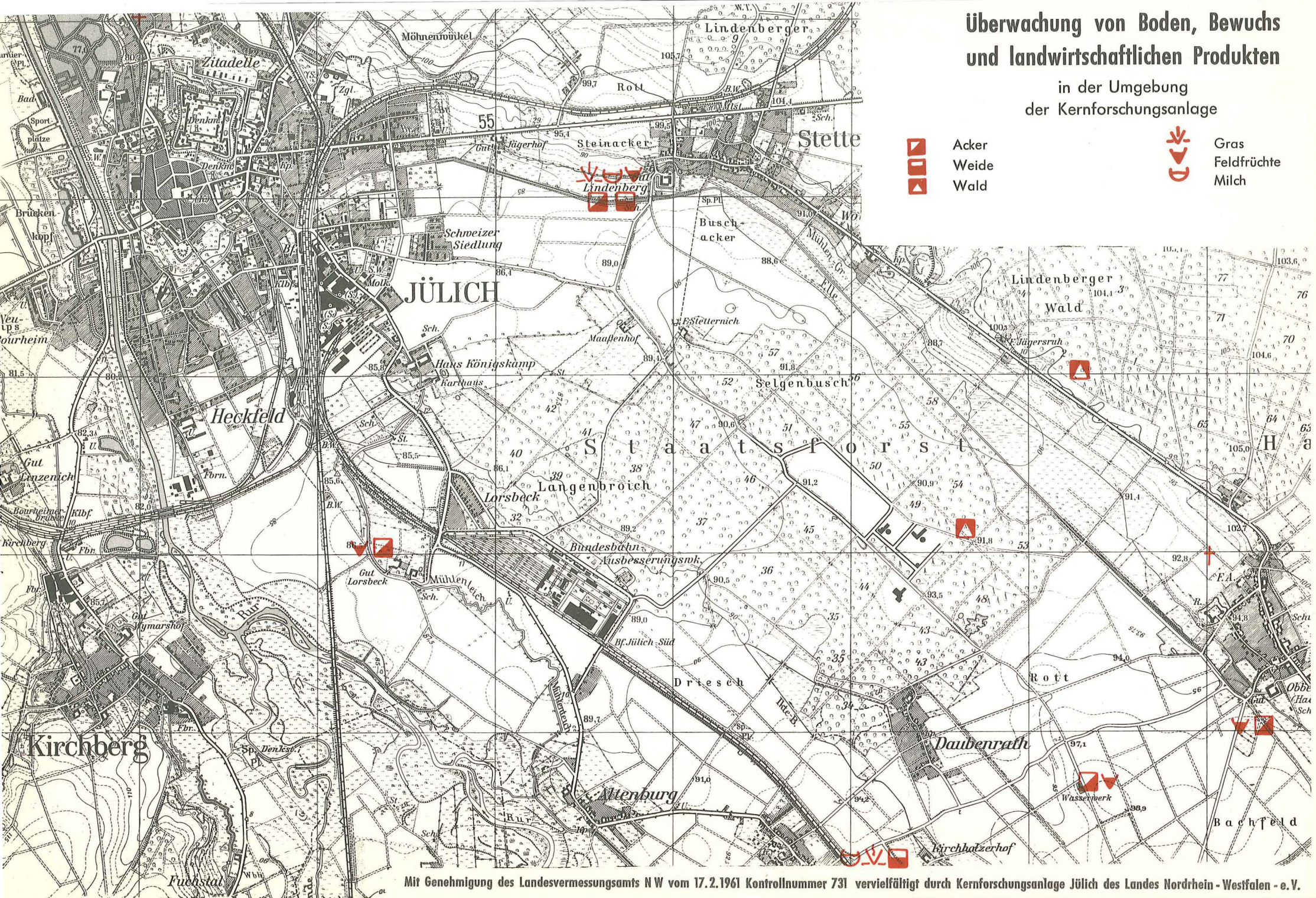
- Schlamm
- biolog. Objekte





# Überwachung von Boden, Bewuchs und landwirtschaftlichen Produkten

in der Umgebung  
der Kernforschungsanlage



Mit Genehmigung des Landesvermessungsamts NW vom 17.2.1961 Kontrollnummer 731 vervielfältigt durch Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein - Westfalen - e. V.



## Wasser- und Bodenüberwachung

in der weiteren Umgebung  
der Kernforschungsanlage

- ▲ Trinkwasser  
 ▲ Oberflächenwasser  
 ● Schlamm  
 ○ biolog. Objekte

- Acker  
 Weide  
 Gras  
 Feldfrüchte  
 Milch

